



TITLE:

共鳴エネルギー中性子断面積の測定精度向上を目指した測定技術の開発とその応用(Dissertation_全文)

AUTHOR(S):

山本, 修二

CITATION:

山本, 修二. 共鳴エネルギー中性子断面積の測定精度向上を目指した測定技術の開発とその応用. 京都大学, 1999, 博士(工学)

ISSUE DATE:

1999-03-23

URL:

<https://doi.org/10.11501/3149684>

RIGHT:

新 制
工
1149

共鳴エネルギー中性子断面積の測定精度向上を
目指した測定技術の開発とその応用

1998 年

山 本 修 二

共鳴エネルギー中性子断面積の測定精度向上を
目指した測定技術の開発とその応用

1998 年

山 本 修 二

要 旨

過去数十年間にわたって、熱中性子から高速中性子に至る広いエネルギー領域における中性子断面積が多くの実験者により繰り返し測定されてきた。測定値の信頼度は年々向上しているとはいえ、測定が容易でない断面積については工学的要求に対して必ずしも十分に応えていないのが現状である。世界的に多くの研究機関が取り組んできたにもかかわらずその進歩は遅い。このような状況を打開するためには既存の測定法を用いて努力するよりも、高精度測定に内在的な長所をもつ新しい測定法の開発が必要であろう。

本研究の目的はこのような視点に立ち、熱中性子から共鳴中性子の広いエネルギー領域における中性子全断面積、捕獲断面積及び核分裂断面積の測定精度向上を目指した測定技術の開発とその応用研究にある。本論文前半では、(1) 新しい中性子捕獲事象検出器として $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ (BGO) シンチレータを用いた全エネルギー吸収型ガンマ線検出器を試作し、その特性を明らかにすると共に、これが捕獲断面積の絶対測定に応用できること、さらに、共鳴捕獲試料と本検出器を組み合わせることにより、高い信号／雑音比を特長とする中性子共鳴捕獲検出器として中性子全断面積の精密測定に応用できることを示す。論文後半では、(2) 強い放射能を伴う試料、断面積の小さな試料、微量試料であっても、その中性子断面積測定を可能とすることを目的とした電子線形加速器と鉛減速スペクトロメータを組み合わせた測定系を構築し、その特性を明らかにすると共に、実際にこれらの技術を比較的不確かさの大きかった共鳴及び中速エネルギー領域における中性子断面積測定に応用し、その有効性を示す。

共鳴エネルギー中性子断面積の測定精度向上を 目指した測定技術の開発とその応用

目 次

第1章 序 論

第1節 本研究の背景・目的	1
第2節 本研究において試みる2種類の測定技術開発に関する着想	2
2-1 中性子捕獲事象測定用検出器	2
2-2 電子線形加速器と鉛減速スペクトロメータを組み合わ せた測定系の構築	4
第3節 本論文の構成とその概要	6
(参 考 文 献)	8

第2章 BGO シンチレータを用いた中性子捕獲事象 測定用検出器の開発とその特性

第1節 緒 言	9
第2節 実験方法	11
2-1 BGO 検出器	11
2-2 実験配置	12
2-3 測定回路系	13

第3節 BGO 検出器の特性	13
3-1 捕獲ガンマ線カスケードに対する検出器の応答測定	13
3-2 散乱中性子に対する感度の測定	14
3-3 $^{10}\text{B}(\text{n}, \alpha \gamma)$ 反応の検出効率測定	15
3-4 モンテカルロ法を用いた計算	16
第4節 結果及び検討	17
4-1 捕獲ガンマ線カスケードに対する検出器の応答	17
4-2 検出器の散乱中性子に対する感度	18
4-3 $^{10}\text{B}(\text{n}, \alpha \gamma)$ 反応に対する検出効率	18
第5節 結 言	19
(参 考 文 献)	20

第3章 BGO 検出器を用いた中性子捕獲断面積絶対測定法の研究

第1節 緒 言	32
第2節 実験方法	33
2-1 試 料	33
2-2 BGO 検出器の構造	34
2-3 実験配置	34
2-4 パルス状中性子源	35
2-5 測定回路系	35
第3節 中性子捕獲収率の絶対測定	36
3-1 熱中性子束の絶対測定	36
3-2 中性子検出効率の較正	37
3-3 捕獲収率	38
3-4 捕獲収率の補正	39
第4節 結果及び検討	40

第5節 結 言	41
(参 考 文 献)	43

第4章 BGO検出器を用いた中性子透過率精密測定 のための中性子共鳴捕獲検出器の開発と利用 に関する研究

第1節 緒 言	48
第2節 中性子共鳴捕獲検出器	49
2-1 検出器の構造	49
2-2 中性子共鳴捕獲試料	50
第3節 実験方法	50
3-1 全断面積測定用試料	50
3-2 パルス状中性子源	51
3-3 実験配置	51
3-4 測定回路系	52
第4節 データ収集・処理	52
第5節 結果及び検討	53
第6節 結 言	54
(参 考 文 献)	56

第5章 中性子共鳴捕獲検出器を応用した中性子 全断面積の精密測定

第1節 緒 言	62
---------------	----

第2節 実験方法	65
2-1 透過率測定用試料	65
2-2 実験配置	66
2-3 中性子検出器	67
第3節 測定と解析	67
3-1 測定方法	67
3-2 データ収集・処理	69
第4節 結果及び検討	71
4-1 アンチモン	71
4-2 鉛-208、天然鉛	72
第5節 結 言	74
(参考文献)	76

第6章 鉛減速スペクトロメータの構築とその特性に関する研究

第1節 緒 言	87
第2節 鉛減速スペクトロメータの原理	89
第3節 京都大学鉛減速スペクトロメータ (KULS) の設置	90
第4節 KULSにおける中性子輸送計算	92
第5節 KULS 特性実験の方法	93
5-1 中性子減速時間とエネルギーの関係	93
5-2 エネルギー分解能	94
5-3 放射化法による中性子束分布及び中性子スペクトル の測定	95
5-4 TOF法による中性子スペクトルの測定	97

第6節 K U L S 特性実験の結果と検討	98
6-1 減速時間とエネルギー	98
6-2 エネルギー分解能	99
6-3 放射化法による中性子スペクトル及び中性子束分布の測定	99
6-4 T O F 法による中性子スペクトルの測定	100
第7節 討 論	102
第8節 結 言	104
(参 考 文 献)	106

第7章 鉛減速スペクトロメータを用いた 0.1 eV ~ 10 keV 領域及び標準熱中性子場における ^{241}Am 核分裂断面積の測定

第1節 緒 言	119
第2節 鉛減速スペクトロメータ (K U L S) による実験方法	121
2-1 鉛減速スペクトロメータ (K U L S)	121
2-2 ^{241}Am 及び ^{235}U 試料	121
2-3 実験に用いた検出器	124
2-4 核分裂比の測定	125
2-5 測定回路系	125
第3節 K U L S による実験データの解析	126
3-1 核分裂断面積の導出	126
3-2 核分裂断面積測定 of 補正	127
第4節 熱中性子核分裂断面積の測定	129
4-1 K U R 重水熱中性子照射設備	129
4-2 実験方法	130
4-3 データ解析	130

第5節 結果及び検討	131
第6節 結 言	134
(参 考 文 献)	136
第8章 結 論	148
第1節 総 括	148
第2節 今後の課題と展望	154
謝 辞	156
発表論文一覧	158

第1章 序 論

第1章 序 論

第1節 本研究の背景・目的

中性子断面積は、原子力の研究・開発を進めていく上で最も重要な基礎データの一つである。安全でかつ経済的な原子炉を設計し、これを継続して運転、維持していくためには、炉心内、外における中性子の振る舞いを詳細に知る必要がある。こうした中性子の挙動については、原子炉の核特性、遮蔽特性として多群のエネルギー構造を持つ輸送計算や連続エネルギー減速モンテカルロ計算などによって求められる^{/1~2/}。近年、計算機や計算法の進歩により高精度の計算が可能となってきたが、計算結果の信頼度はその計算に使用される断面積データの精度に大きく依存する。過去数十年間にわたって、熱中性子から高速中性子に至る広いエネルギー領域における中性子断面積が多くの実験者により繰り返し測定されてきた^{/3/}。測定値の信頼度は年々向上しているとはいえ、測定が容易でない断面積については工学的要求に対して必ずしも十分に応えていないのが現状である。世界的に多くの研究機関が取り組んできたにもかかわらずその進歩は遅い。このような状況を打開するためには既存の測定法を用いて努力するよりも、高精度測定に内在的な長所をもつ新しい測定法の開発が必要であろう。

本研究の目的はこのような視点に立ち、熱中性子から共鳴中性子の広いエネルギー領域における中性子全断面積、捕獲断面積及び核分裂断面積の測定精度向上を目指した測定技術の開発とその応用研究にある。具体的には、(1) 電子線形加速器をパルス状中性子源とした飛行時間分析法による中性子捕獲断面積測定を目的とした全エネルギー吸収型検出器系を試作し、その特性を実用面から明らかにすると共に、これを中性子捕獲断面積の絶対測定及び高精度の中性子透過率測定用検出器として応用すること、次に(2) 強い放射能を伴う試料、断面積の小さな試料、微量試料であっても、その中性子断面積測定を可能とすることを目的とした電子線形加速器と鉛減速スペクトロメータを結合させた測定系を構築し、

その特性を明らかにすると共に、これらの技術を比較的不確かさの大きかった共鳴及び中速エネルギー領域における中性子断面積の測定に応用することである。

第2節 本研究において試みる2種類の測定技術開発に関する着想

2-1 中性子捕獲事象測定用検出器

中性子捕獲事象測定用検出器は、中性子を捕獲した際に発生する即発ガンマ線を検出することにより捕獲事象の起こった数を測定するもので、この数の測定精度がそのまま捕獲断面積の精度につながる。この検出器に要求される主な性質の1つは、捕獲という事象に比例した検出効率を持つことである。しかるに、核種やその励起状態によって、そこから崩壊する様式が異なるためガンマ線スペクトルが異なる。したがって、ガンマ線スペクトルに依存しない検出効率を持たせる工夫が必要となる。このような条件を満たす測定法として、(1) 大形液体シンチレータタンクを用いる方法、(2) Moxon-Rae 型検出器による方法、(3) パルスハイトウエイティング法、が用いられてきた/4/。

(1)の方法は、中性子捕獲後に現れる最高 8 MeV 程度のガンマ線に対しても相当大きな検出効率を有するように、直径 1 m 以上の大型タンクに液体シンチレータを充填し、これに貫通孔を設け、その中央に試料をセットし、貫通孔を通して入射してきた中性子により捕獲を起こさせ、その際に発生する即発ガンマ線をほぼ全て吸収しようとするものである。こうした大型タンクは ORNL/5/、RPI/6/、ANL/7/、KFK/8/、JAERI/9/など多くの研究所で設置利用されてきた。これらの大型検出器は検出効率が高く、応答関数も単純となる利点がある。しかし反面、容積に比例してバックグラウンドが大きくなることおよび、試料で散乱された中性子がタンク内のシンチレータによって減速された後、最終的に水素原子によって捕獲吸収され、2.2MeVのガンマ線を放出するため、高い弁別レベルを設定しなければならず、このことに伴う系統的誤差が大きいことが問題と言われている。散乱中性子に対しては、貫通孔に ${}^6\text{LiH}$ などの遮蔽材を挿入して混入を防いでいるほか、ボロン(B)をシンチレータに溶解させて散乱中性子を捕獲吸収させる方法も

あるがその場合、入射中性子束の測定に信頼度の高い $^{10}\text{B}(n, \alpha \gamma)$ 反応の断面積を標準値として利用できない。この反応を利用しようとするれば別に検出器系統を用意する必要があり、一般的には実験誤差を積み重ねることになる。これらのバックグラウンドは、大型液体シンチレータタンクを捕獲断面積測定に用いた場合避けられない問題である。

(2)の Moxon-Rae 型検出器は、検出器の外に置かれたコンバータ内におけるガンマ線の相互作用で作られた2次電子を検出する方式のガンマ線検出器である。MoxonとRaeは小さな原子番号の物質の厚いコンバータを用い、これから発生する2次電子を薄いプラスチックシンチレータで検出する方式の検出器を試作し、その特性を最初に発表した/10/。とくに黒鉛と少量のビスマスから成るコンバータを選ぶと、検出効率が入射ガンマ線エネルギーにほぼ比例するようにできることを見出した。このような検出器を中性子捕獲の際に放出されるカスケードガンマ線に対して使用した場合、その検出効率 ϵ は次式に示すように励起エネルギー(結合エネルギー E_b と入射中性子の運動エネルギー E_n の和)に比例することになる。

$$\epsilon = \sum_i k E_i = k (E_b + E_n)$$

ここで k は定数、 i はあるカスケードの1つのガンマ線を表し、そのエネルギーが E_i である。従って、任意の捕獲事象の検出効率が、捕獲に続く特定のカスケードモードに依存しなくなるので中性子捕獲実験の際の解析が非常に簡単なものとなる。ただ、検出効率が低い(数パーセント)ことがこの検出器の欠点である。

(3)のパルスハイトウェイティング法は、Macklinらによって開発された方法/11/で、ガンマ線検出器であれば原理的にはどれにも適用できる。実際には中性子感度を下げることが必要で、水素を含まない C_6F_6 シンチレータや C_6D_6 シンチレータなどが中性子捕獲断面積測定に使用されている。本方法は Moxon-Rae 型検出器と同様な検出効率をソフトウェア的に実現しようとするもので、使用する検出器固有の重み関数を準備することが必要である。パルスハイトウェイティン

グ法は、カスケードで崩壊するガンマ線のうち1つを検出するが、2つ以上は同時に検出しないことが必要で、そのため検出効率が低いものとなる。

以上のように、これら3種類の測定法には一長一短があり、また測定値間にも系統的な違いがあるとの見方もある。そこで、本研究では新しい中性子捕獲事象検出器として、大型液体シンチレータタンクの持つ原理的長所を取り入れると共に、従来の有機液体シンチレータに付随する種々の問題を改善するため、 $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ (BGO) シンチレータを用いた全エネルギー吸収型検出器を試作し、その特性を明らかにすると共に、実際に中性子捕獲断面積の絶対測定に応用出来ることを示す。さらに、本検出器と共鳴捕獲試料を組み合わせることにより、信号／雑音比の優れた中性子共鳴捕獲検出器として、中性子全断面積の精密測定に応用し、その有効性についても示す。

2-2 電子線形加速器と鉛減速スペクトロメータを組み合わせた測定系の構築

中性子断面積の測定には、基本的に3種類のハードウェアを必要とする。まず、測定の対象となる試料が必要であって、それには放射能を伴わない自然の物質からなる試料、同位元素として分離された試料、放射能をもつ試料などがある。次に、それぞれの測定法に伴う各種の検出器及びそれぞれの測定に適した中性子源が必要である。一般に放射性の試料は微量しか入手しにくく、また入手出来たとしても対象とする放射線の計測は、試料自身から発生する放射線により妨害され、測定は困難を極める。このような場合極めて強力な中性子源を用いればその困難を解決できるが、その場合中性子源の強度に反比例して試料の量が少なくてよく、それだけ放射線量が低く妨害度が低減される。この点に着目し、本研究後半では、電子線形加速器と鉛減速スペクトロメータ/12/を組み合わせることにより試料に入射する中性子束を、標準的な中性子飛行時間法に比べて3桁以上も高くしようとするものである。

鉛減速スペクトロメータは、中性子エネルギー分解能に対する要求があまり高くない測定において、試料を照射する中性子束を高くする具体的な方法として用いられてきたが、従来これに用いられたパルス状中性子源は、一般に小型のD-T

中性子源であった。この場合でも照射試料の中性子束が未だ十分ではなく、極微量の試料や非常に小さい断面積の試料或いは放射性試料の核データの測定において質的飛躍をなす程度には至っていない。一方、電子線形加速器によるパルス状の光中性子源は、一般のD-T中性子源に比べて約100倍程度の中性子強度を有しており、またそのパルス運転特性は鉛減速スペクトロメータと組み合わせるのに都合がよい。このスペクトロメータと電子線形加速器を組み合わせ例として、レンスラー強力中性子源（RINS）が米国のレンスラー工科大学（RPI）に設置されている。Slovacek等はこのを用いて核分裂断面積を測定する場合、核分裂断面積が1バーンの試料の場合1マイクログラムの試料が用意できれば測定が可能であることを示している/13/。なお、電子線形加速器中性子源は、標準的な中性子飛行時間法により共鳴領域の核データの測定に用いられ、一般に極めて高いエネルギー分解能が得られるが、試料位置での中性子束が少なく、試料量の少ない測定及び放射性の試料には適していない。本研究で採用する鉛減速スペクトロメータと電子線形加速器を組み合わせシステムは、5 m の飛行路をもつ通常の飛行時間分析法と比較して数千倍を越える中性子束が期待できる/13/。また、エネルギー的にも、従来の断面積データで比較的不確かさの大きかった共鳴及び中速エネルギー領域での断面積測定に適しており、測定精度の向上が期待できる。

最近、長寿命高レベル放射性廃棄物の消滅処理に関連して、超ウラン核種及び核分裂生成物（FP）の中性子断面積が注目されている。これらの測定は、原子力エネルギー利用の発展にとって極めて重要な位置を占める核燃料サイクルの確立、或いはその事前評価に関わる問題にとって重要な情報を提供するものである。しかし、これらの核種は試料自身が強烈な放射能を持つことや測定用の高純度試料の入手が容易でないことなど実験上の困難が多く、精度の高いデータ取得の妨げとなっている。

本研究の目的は、これらの放射性試料に対する共鳴中性子断面積の測定が可能となる強力な中性子スペクトロメータとして電子線形加速器をパルス中性子源とする鉛減速スペクトロメータを設置し、その特性を明らかにすること、及びこれを用いて典型的な核データを実際に測定しその測定手法の有効性を示すことであ

る。鉛減速スペクトロメータでは、エネルギー分解能はそれ程高くなくても、高い中性子束が期待出来ると共に、エネルギーに依存した中性子反応率の測定が可能となることから、以下のような実験的研究への期待が持てる。

- (1) アクチニド核種、或いは消滅処理関連の核種の中性子断面積、
 - (2) F P核種など、試料を多量に入手することが困難となる核種の中性子断面積、
 - (3) 核理論の面などから興味が持たれる反応で、断面積が小さいため従来の実験法では測定が困難であった中性子断面積、
- などに関する基礎的な研究への応用が考えられる。

第3節 本論文の構成とその概要

本論文は第1章～第8章で構成されており、第1章（序論）に続く第2章以後の概要は次のとおりである。

第2章では、BGO検出器系を設計し、構築したことの詳細及びその特性測定の結果について述べている。特性測定の主たるものは、中性子捕獲断面積の絶対測定に重要な単色エネルギーガンマ線に対する応答及び典型的な捕獲ガンマ線カスケードに対する応答、並びに測定を妨害する測定試料により散乱された中性子の検出感度である。その結果、新しい特徴を有した中性子捕獲断面積測定用の検出器系が構築されたこと、及び比較的高エネルギー領域においては試料からの散乱中性子の影響に十分留意すべきことなどが述べられている。

第3章では、構築したBGO検出器系の中性子捕獲断面積絶対測定へ応用した結果が述べられている。採用した試料は金とアンチモンであり、金は放射化法を併用した捕獲断面積の測定が可能で、既に相当信頼性の高い測定値を有する標準的試料として、また、アンチモンは原子炉起動用中性子源に用いられ、現在なお比較的信頼度の低いデータしか存在しない材料であるとの観点から選定した。測定結果に検討が加えられ、当該BGO検出器系の中性子捕獲断面積測定における可能性を結論している。

第4章では、BGO検出器系を中性子共鳴捕獲検出器として中性子全断面積の精密測定に応用できることを示している。構築したBGO検出器系は、本来、試料における中性子捕獲に伴う即発ガンマ線を検出する検出器系であるが、若干の工夫により全断面積の測定に用いることができ、しかも一般に全断面積の測定精度低下の主因である実験中のバックグラウンドを信頼度高く見積もることのできる特徴を備えていることを示している。

第5章では、BGO検出器系を用いた共鳴捕獲検出器による全断面積精密測定への応用例が示されている。測定試料は、測定データの学術的・実用的応用の観点から天然鉛、鉛-208、アンチモン等を選定した。従来の測定値や評価値と本測定結果を比べると、一部に差異が見られたことから再評価の必要性を指摘している。

第6章では、鉛減速スペクトロメータの構築とその特性測定の結果が述べられている。特性の主たるものは、減速時間とエネルギーの関係、エネルギー分解能等であり、特に高エネルギーガンマ線バックグラウンド低下のために鉛体系内に設けた一部ビスマス領域内の特性結果には特徴がある。

第7章では、鉛減速スペクトロメータを用い、強放射性試料であって、マイナーアクチニド消滅処理の観点からも注目される核種の一つであるアメリカシウム-241の核分裂断面積を0.1eV~10keVにおいて測定した結果をまとめている。

第8章は研究全体のまとめであり、この研究で試みた2種類の測定技術開発・研究の結果を総合的に総括するとともに、それぞれの将来への可能性を検討している。

[参考文献]

- /1/ K. Tuchihashi, et al. : "SRAC; JAERI Thermal Reactor Standard Code System for Reactor Design and Analysis", JAERI 1285 (1983) and Revised SRAC code System JAERI 1302 (1986).
- /2/ Los Alamos National Laboratory, "MCNP - A General Monte Carlo Code for Neutron and Photon Transport, Version 3A", LA-7396-M (1986).
- /3/ V. McLane, C. L. Dunford and P. F. Rose : "Neutron Cross Sections , Vol.2, Neutron Cross Section Curves", Academic Press, Inc. (1988).
- /4/ R. E. Chrien, (Ed.): "Neutron Physics and Nuclear Data in Science and Technology", Neutron Radiative Capture, OECD/NEA, Pergamon Press, Vol.3 (1984).
- /5/ G. de Saussure, et al. : Nucl. Sci. Eng., **51**, 385 (1973).
- /6/ R. W. Hockenbury, et al. : Phys. Rev., **178**, 1746 (1969).
- /7/ W. P. Poenitz : Nucl. Sci. Eng., **57**, 300 (1975).
- /8/ D. Kompe : Nucl. Phys., **A133**, 513 (1969).
- /9/ M. Mizumoto, et al. : J. Nucl. Sci. Technol., **16**, 711 (1979).
- /10/ M. C. Moxon and E. R. Rae : Nucl. Instrum. Meth., **24**, 445 (1963).
- /11/ R. L. Macklin and J. H. Gibbons : Phys. Rev., **159**, 1007 (1967).
- /12/ A. A. Bergman, et al. : Proc. 1st Int. Conf. on Peaceful Uses for Atomic Energy, United Nations, Vol. 4, p.135 (1955).
- /13/ R. E. Slovacek, et al. : Nucl. Sci. Eng., **62**, 455 (1977).

第2章 BGO シンチレータを用いた中性子捕獲事象 測定用検出器の開発とその特性

第2章 BGOシンチレータを用いた中性子捕獲事象測定用検出器 の開発とその特性⁽¹⁾

第1節 緒言

中性子捕獲断面積は、原子炉の核特性に重要な役割を果たしている。原子炉工学の分野においてこれらの断面積に要求されている精度は、現在、実験的に得られている測定精度よりさらに高いものである。例えば、keV領域においてウラン-238 (^{238}U)に要求されている精度は2~3%であるが/2/、多くの実験データから見てその精度は未だ5%程度である/3/。このような状況では、従来の測定法で努力するよりも高精度達成の可能性をもつ新しい測定法の開発が望ましい。

中性子捕獲断面積の測定においては、試料に入射する中性子束と、起こった捕獲事象の数を知る必要がある。後者は、中性子を捕獲した原子核が放出する即発ガンマ線を計数することによって測定できる。即発ガンマ線は Fig. 2-1 に示すように、捕獲により生じた励起複合核が基底状態に遷移する際に発するカスケードガンマ線であり、捕獲断面積測定にとって重要なことは、捕獲事象の計数効率が放出ガンマ線のカスケードモード、即ち放出ガンマ線のエネルギースペクトルに依存しないことである。大容量シンチレータの中心付近に捕獲試料を置いた検出器では、放出ガンマ線をほぼ全て吸収することになるので、捕獲事象の検出効率は100%に近くなる。この種の理想的な検出器の応答は異なるカスケードモードに対しても同じで、応答パルス数は直接捕獲事象数を与える。このような検出器は全エネルギー吸収型検出器と呼ばれ、通常1000 g以上の有機液体シンチレータを用いて製作される/4/。実際の検出器のパルス波高スペクトルは、理想的なパルス波高からゼロ波高側に尾を引いたように広がるため、低パルス波高域のバックグラウンドと重なり正確な捕獲事象数の決定が難しくなる。

本章では、液体シンチレータの代わりに $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ (BGO) シンチレータ/5/を用い

て、次のような特徴をもつ全エネルギー吸収型検出器の開発研究について述べる。
なお、過去においてBGOシンチレータを全エネルギー吸収型検出器として使用した例はなく、本研究が初めての試みである。

- (1) BGOは密度が高い(7.13 g/cm^3)のでガンマ線の線吸収係数が大きく、従って捕獲ガンマ線の大部分を吸収するのに必要なシンチレータの体積が有機液体シンチレータの場合に比べ、1/1000程度となる。このことは、全エネルギー吸収型検出器を小形化するので周囲からのバックグラウンドによる影響がそれだけ少なくなる。
- (2) 小形化に伴って、遮蔽や収納施設などの付帯設備に関する技術的問題が少なく、検出器の調整・維持が容易で経済的にも有利である。
- (3) 大型液体シンチレータの場合には、試料で散乱された中性子がシンチレータ中の水素に捕獲されて高エネルギー(2.2 MeV)の即発ガンマ線を発生し、大きなバックグラウンドの原因となる。これを低減するため、通常は液体シンチレータ中にボロン-10(^{10}B)酸化物を溶解し、 $^{10}\text{B}(n, \alpha \gamma)$ 反応により散乱中性子を吸収するようにしている。この場合、試料に入射する中性子束の測定には標準断面積として信頼度の高い $^{10}\text{B}(n, \alpha \gamma)$ 反応/6/を利用することはできない。ところが、BGOシンチレータの場合は ^{10}B を含まないので、入射中性子束の測定に $^{10}\text{B}(n, \alpha \gamma)$ 反応が利用できる。
- (4) これらの理由から、BGO検出器系では中性子束と捕獲事象の測定において、同一検出器による同一の試料位置での測定が可能となるため、捕獲断面積の高精度測定に適している。

本研究では、中性子捕獲断面積の測定用検出器としてBGOシンチレータを組み合わせた全エネルギー吸収型検出器を試作し、(1) 中性子捕獲ガンマ線に対する全エネルギー吸収型検出器としての応答、(2) 試料によって散乱された中性子に対する感度、(3) 中性子束測定に $^{10}\text{B}(n, \alpha \gamma)$ 反応を利用する場合に必要な478 keVガンマ線に対する検出効率など、BGO検出器の諸特性を明らかにした。

第2節 実験方法

2-1 BGO検出器

BGOシンチレータの特性をTable 2-1に示す/5/。定性的にはNaI(Tl)シンチレータのそれと似ていると言えるが、比重はその2倍近くあり、ガンマ線に対する線吸収係数もほぼ2倍である。発光効率はNaI(Tl)の約8%であって、それだけ波高分解能が劣る。屈折率が2.15と大きい性質を持っているので、後に示すような問題を生ずる。中性子に対する感度が小さくなるためには、検出器の構成材料は中性子捕獲断面積の小さいものでなければならないが、ゲルマニウム(Ge)はヨウ素(I)に比べて中性子捕獲断面積が小さいため、BGOはNaI(Tl)に比べて中性子感度はそれだけ小さくなる。

BGO検出器系の構造をFig. 2-2に示す。体積が5cm x 5cm x 7.5cmのBGOシンチレータ(日立化成工業株式会社製)、直径3.8cm光電子増倍管(R580、浜松ホトニクス株式会社製)、磁気シールド、光電子増倍管ベース、前置増幅器で構成された検出器を8台用意し、これらのシンチレータ部が中央に集まるように組み立て、できるだけ球状となるように配置した。このとき、各シンチレータ間に生ずる間隙や構造材を最小限に抑えるため、シンチレータ部はアルミニウムの薄板で覆うだけにした。また、検出器中央に断面が2cm x 2cmの中性子入射用貫通孔を設けるように配置したが、組立方法を少し調整するだけで角形貫通孔の大きさを容易に変えることができた。

BGO検出器の構造を決めるにあたり、先ず検討したことは全エネルギー吸収型とするために必要なBGOシンチレータの体積である。従来の大型液体シンチレータの体積は1~3m³にも及び、ガンマ線吸収係数の比を約10と仮定すると、BGOシンチレータの体積は1~3ℓに相当する。これについては、Fig. 2-3に示したようにモンテカルロ計算の結果からも確認できる。現在のところ、このように大きな結晶を一体として製作することは困難であるため、小さな結晶を複数個用いて全体として1~3ℓのBGOシンチレータを用意することにした。この場合、相当数の小片をシリコングリース等で接着し一体として用いることも考えられた

が、接着材の屈折率が1.5程度、BGOのそれが2.15であることから接着面でのシンチレーション光の反射による集光効率の低下が予想される。実際にどの程度集光効率が低下するかについて、BGOシンチレータどうしをシリコングリースで接着し、実験的に確かめた。その実験配置と測定結果をFig. 2-4 に示す。 ^{60}Co 線源から放出されるガンマ線を直径 8 mm の鉛コリメータを通してBGOシンチレータの横方向から3個所の位置（図中、① ② ③）に入射させ、各々の応答を調べた。その結果、同図(b)に示したようにBGO-2内で発生したシンチレーション光は隣のBGO-1内での発光に比べ約1/2しか集光されていないことが分かる。この原因は接合面での全反射によるものと考えられる。従って、接着によりBGO結晶を一体化する代わりに、各結晶に各々小形の光電子増倍管を取り付けることにした。

2-2 実験配置

BGO検出器の特性測定に関する実験は、京都大学原子炉実験所付設の46MeV電子線形加速器（ライナック）を用いた中性子飛行時間分析法（TOF法）により行った。加速器及び中性子飛行管を含む建屋全体の平面図をFig. 2-5 に、実験配置をFig. 2-6に示す。本実験ではライナックの電子ビームに対して135度方向に設置された12m飛行管を使用した。飛行管内部はロータリーポンプにより常時真空（ 10^{-2} torr以下）に保たれている。ライナックで加速された高エネルギー電子（ ~ 30 MeV）が水冷タンタルターゲット/7/に当たることにより発生したパルス状の高速中性子は、ターゲット周辺に置かれたポリエチレン減速材で減速され、その一部が直径約 20cm の中性子飛行管に入る。中性子ビームは、飛行管内及びBGO検出器前に配置されたコリメータにより最終的には、直径15mmの断面となるように絞られて検出器の中性子入射用貫通孔の中央に置かれた試料に当たるようにした。中性子コリメータの材料には、主として B_4C 、 Li_2CO_3 、Pbを使用した。飛行管の入り口に設置された鉛製シャドウシールドは、ターゲットからの強いガンマフラッシュの遮蔽用である。また、イオウのフィルターは、高エネルギー中性子を遮蔽するためのものである。測定中の中性子ビーム強度の変動は、飛行路

中に配置したBF₃比例計数管によりモニターした。

2-3 測定回路系

実験に使用した測定回路系のブロック図をFig. 2-7に示す。本測定系は、3つの情報（図中、①、②、③）をマルチパラメータ分析器に記録するように構成されている。まず①は、8個のBGO検出器からの信号に対応した8つの波高弁別器出力を抵抗網から成る混合器(MIX.)で加算し、線形増幅器(L.A)を通して波高分析器に入る。これより捕獲ガンマ線の多重度に関する情報が得られる。次に②は、8個の検出器の前置増幅器の出力を8チャンネル高速増幅器(8ch F.A)に入力し、ゲイン調整により出力波高を揃えた後、加算増幅器(S.A)で加算して波高分析器に入る。これから捕獲ガンマ線の全吸収エネルギースペクトルに関する情報が得られ、これより捕獲事象の数を知ることができる。また、加速電子によるターゲット電流をトリガ信号として、対象とする中性子飛行時間に相当するゲート信号をデジタルディレイアンドゲート発生器(D.D.G)で発生し、この信号でリニヤゲートアンドストレッチャー(L.G.S)のゲートを開くことにより中性子エネルギーに対応した捕獲ガンマ線が測定できる回路系になっている。最後に③は、ターゲット電流をスタート信号、BGO検出器からの信号をストップ信号として、試料で捕獲される中性子の飛行時間（中性子のエネルギー）に関する情報を得ようとするものである。

第3節 BGO検出器の特性

3-1 捕獲ガンマ線カスケードに対する検出器の応答測定

中性子捕獲に伴って放出されるカスケードガンマ線に対する検出器のパルス波高応答は、検出器の性能を左右する重要な特性のひとつである。もし、検出器が理想的なもので、捕獲ガンマ線を全て吸収するものであれば、中性子の結合エネルギー E_b と捕獲中性子の運動エネルギー E_n の和に相当するパルス波高付近にピークを示すはずである。このような検出器は、信号と雑音の弁別やそれに伴う

補正の問題がなくなり、捕獲断面積測定を行う上で極めて都合のよいものとなる。

本研究では、試作した検出器の中性子捕獲ガンマ線に対する応答特性をライナックを用いた中性子飛行時間分析法により測定する。この時の実験配置とデータ収集に用いた電子回路系については、前節 2-2項及び 2-3項で述べたとおりである。中性子捕獲試料としてタンタル、金、鉄を使用した。これら3種類の試料は、放出される捕獲ガンマ線が以下のようにそれぞれ異なるタイプのスペクトルを示すので選定した。 $^{182}\text{Ta} (^{181}\text{Ta} + n)$ は複合核のレベル密度が高く、その結果として多重度の大きいガンマ線カスケードとなり、軟らかいガンマ線スペクトルを示す。一方、レベル密度の低い $^{57}\text{Fe} (^{56}\text{Fe} + n)$ は多重度が小さく、基底状態付近へ直接遷移するときに放出する高エネルギー成分が支配的なスペクトルを示す。 $^{198}\text{Au} (^{197}\text{Au} + n)$ の場合は、ちょうどその中間の場合とみなすことができる。

3-2 散乱中性子に対する感度の測定

測定しようとする試料からは、中性子捕獲によって放出されるガンマ線と同時に、試料で散乱された中性子も検出器に入ってくる。散乱中性子に対する感度が低いことは、中性子捕獲断面積測定に使用されるガンマ線検出器にとって重要な特性のひとつである。特に、散乱断面積と捕獲断面積の比 (σ_s/σ_c) が大きい試料の場合に重要となる。原子炉構造材などに使用される軽中重核の中性子共鳴準位による反応では、散乱断面積が捕獲断面積の 10^3 倍も大きいのが普通である。例えば、 ^{56}Fe の 27.7 keVの共鳴の場合、中性子巾 Γ_n 1420 eV に対して捕獲巾 Γ_γ は約 1 eVである。

本研究では、BGO検出器の散乱中性子に対する検出感度を飛行時間分析法により熱中性子領域から60keVの範囲にわたって測定した。なお、ここで言う散乱中性子に対する検出感度を次のように定義する。

$$\text{検出感度} = (\text{BGO検出器による弁別レベル200keV以上の計数}) / (\text{捕獲試料で散乱された中性子の数})$$

測定には、前項の実験と同一配置をとり、捕獲試料の代わりに散乱のみを起こす試料として黒鉛を置きその散乱中性子を測定した。入射中性子束は次項の実験で示すように試料に ^{10}B を用いることにより測定し、黒鉛の散乱断面積を用いて「散乱した中性子の数」を算出し、BGOで得た計数の散乱中性子に対する比をとって感度とした。

中性子に対する感度を下げるため、Fig. 2-8 に示すように、厚さ3mm の ^6LiF タイル/8/でシンチレータを遮蔽した場合についても感度測定を行った。リチウム-6 (^6Li) はガンマ線を伴わず中性子を吸収するのでこのような場合の遮蔽材として適している。

3-3 $^{10}\text{B}(n, \alpha \gamma)$ 反応の検出効率測定

中性子捕獲断面積の絶対測定を行う場合、試料中で起こった捕獲事象の数と同様に試料へ入射する中性子束の絶対値も測定する必要がある。BGO検出器の場合、同一の検出器でその両方を測定することが可能である。 $^{10}\text{B}(n, \alpha \gamma)$ 反応の断面積は中性子エネルギー100keV程度以下では十分精度よく知られており、中性子束測定の際の標準断面積/6/として用いられることが多い。即ち、この反応で放出される478 keVの即発ガンマ線を検出測定することにより入射中性子束を決定するわけである。捕獲断面積の測定精度として、例えば2%を要求すれば、少なくともこれ以上の精度で478 keV ガンマ線を検出する必要がある。さらに厳密に言えば、 ^{10}B 試料中でのガンマ線の吸収、ガンマ線発生への分岐比などの問題を併せて、入射中性子束を2%以内の精度で知る必要がある。ここでは2種類の異なる方法により検出効率を測定し、相互比較を行った。

第1の方法は、別に較正された種々のエネルギーのガンマ線源を用い、BGO検出器の効率曲線を求めて内挿により478keVにおける検出効率を導出する方法である。ここでは較正用線源として ^{198}Au (411keV)、 ^{137}Cs (662keV)、 ^{54}Mn (835keV)を用いた。478keVに最も近い ^{198}Au の411keV線源については $\beta-\gamma$ 同時計数法により測定した ^{198}Au の絶対崩壊率を用いた。他の2つについては検出効率決定にあたっての重みは低いので市販の線源にて十分である。

第2の方法はサマリウム (Sm) による捕獲ガンマ線を利用する方法である。Sm は熱中性子捕獲断面積が大きく、入射する熱中性子は散乱されずにほぼ完全に捕獲される。また、捕獲に伴う即発ガンマ線の多重度が大きい (1 捕獲あたり平均 5.6本のガンマ線を放出/9/) ため、BGO検出器が Sm による捕獲を検出し損なう確率は小さい (0.1%以下) とみてよい。このことは次のようにして確かめた。幸いBGO検出器は8個に分割されていて、各BGO検出器からの信号が別々に得られるようになっている。これを利用して Sm 試料とした場合、捕獲あたり何個のBGO検出器が信号を出すのか、その分布を測定した。Fig. 2-9 に示したように4個のBGO検出器が信号を出す確率が最も高く、分布はガウス分布状になっている。これから見ると、捕獲を検出し損なう確率 (横軸ゼロでの値を推定して) は十分小さいと結論できよう。即ち、Sm 試料によるカウント1は入射中性子1個に相当する。一方、 ^{10}B 試料もまた熱中性子に対してほぼ 100 %に近い反応率を示す。従って、 ^{10}B 試料による計数との比 ($^{10}\text{B}(n, \alpha \gamma)$ 反応による478keVガンマ線放出率の補正が必要) をとることにより、 $^{10}\text{B}(n, \alpha \gamma)$ 反応で放出される478keVガンマ線に対する検出効率を得ることが出来る。

3-4 モンテカルロ法を用いた計算

検出器の設計に当たって、その形状や大きさを検討するための手段としてモンテカルロ法を用いた計算コードを作成した。これは、検出器の形状やシンチレータの特性を考慮したモンテカルロ法により、検出器内におけるガンマ線の挙動を模擬した計算である。計算の概略を示したフローチャートをFig. 2-10に示す。本計算コードを単色ガンマ線に対する検出効率や捕獲ガンマ線に対する検出器の応答 (パルス波高分布) などの特性計算に利用した。エネルギー分解能についてはガウス分布を、またその幅は $1/\sqrt{E}$ で変化すると仮定し、実験値を再現するようにした。ガンマ線源は検出器の中性子入射用貫通孔の中央に点状の等方線源として配置した。中性子捕獲によって放出されるガンマ線カスケードに対する検出器の応答を計算する際には、ガンマ線の放出スペクトルを模擬しなければならない。これについては、文献/10/より引用した遷移確率を用いて作成したガンマ線

スペクトルを用いて計算した。

第4節 結果及び検討

4-1 捕獲ガンマ線カスケードに対する検出器の応答

異なった様式の捕獲ガンマ線カスケードを代表する3種類の試料（タンタル、金、鉄）を用意し、熱中性子捕獲に対する検出器の応答を測定した。測定結果をFig. 2-11～Fig. 2-13に示す。3種類の試料に対する結果はいずれも中性子の結合エネルギーに相当するパルス波高付近にピークを持ち、パルス波高の減少とともに緩やかに低下しており、典型的な全エネルギー吸収型のスペクトルを示していることが分かる。このスペクトルの全面積が中性子捕獲事象の数となるわけであるが、雑音のため左端数百keV以下のスペクトルが測定されていない。適当な外挿によって全面積（中性子捕獲事象の数）を求めることになるが、従来の大型液体シンチレータの場合では2～3 MeV程度以下の領域が雑音領域として弁別されていたことを考えると、全面積の信頼度は相当改善されることになる。なお、金の高エネルギー部のスペクトルを従来のもの（Fig. 2-14参照）/11/と比較してみると、当BGO検出器（1.5ℓ）は1300ℓの大形液体シンチレーション検出器より優れたパルス波高特性を持つことが分かる。

一方、モンテカルロ計算コードを作成し、種々の特性を計算した。BGOシンチレータ系の中心、即ち捕獲試料の位置に置かれた単色の等方発生線源に対する効率計算を行った結果をFig. 2-15に示す。この図から捕獲事象検出効率を概算により求めると、カスケードガンマ線が1本の場合は少なくとも70%、2本になれば90%、3本になれば97%となる。実際のガンマ線カスケード/10/を模擬して計算した本検出器の応答をFig. 2-11～Fig. 2-13に実験結果と重ねて示した。鉄の場合の計算は ^{56}Fe に関するもので、他の同位体は考慮されていない。計算結果は一応実験の特徴をとらえており、検出器の設計にあたって、その形状や容量決定に役立つものである。

4-2 検出器の散乱中性子に対する感度

試料によって散乱された中性子に対する感度の測定結果をFig. 2-16に白丸で示した。図に示した縦軸の感度とは、前節3-2項で定義したように、試料で1個の中性子が散乱された場合に、BGOがガンマ線を検出する確率である。実用上、散乱中性子に対する感度は 10^{-3} 程度まで下げたいところであるが、本結果は 10^{-2} ～ 10^{-1} を示し、必ずしも十分低いものとはならなかった。その原因は主としてシンチレータ材料中のゲルマニウムによる中性子捕獲によるものと考えられる。

中性子感度を下げるためFig. 2-8に示すように試料とBGOシンチレータ間に ^6LiF タイルをセットして同様の測定を行った。その結果はFig. 2-16に黒丸で示した。これらの図から明らかなように、10eV以下では中性子感度に著しい改善が見られる。10eV以上の領域では、貫通孔を大きくして厚い遮蔽を設けるなど、何らかの工夫が必要である。貫通孔を大きくした場合、捕獲ガンマ線のもれが多くなり全エネルギー吸収型検出器としての性能が低下することに注意する必要がある。

4-3 $^{10}\text{B}(n, \alpha \gamma)$ 反応に対する検出効率

$^{10}\text{B}(n, \alpha \gamma)$ 反応を用いて測定試料に入射する中性子束測定を行う場合、478keVのガンマ線に対する検出効率を求める必要がある。ここでは、異なる2種類の方法によって検出効率を測定した。Fig. 2-17にその結果を示す。図中の黒丸は3つの標準線源による結果で、これから直線に最小2乗フィットすることにより478keV点での検出効率を得た。同じく白丸は、Smと ^{10}B 試料を用いる方法により得た結果である。図から明らかなように、異なる方法により求めた結果は誤差(1.5%)内で一致している。従って、 $^{10}\text{B}(n, \alpha \gamma)$ 反応による中性子束測定手法を熱中性子以外の領域へ拡張した場合にはこの程度の測定精度が得られるものと期待できる。

第5節 結 言

BGOシンチレータは、密度と原子番号が共に大きい材料であり、ガンマ線の線吸収係数が大きく、小形のシンチレータとして高い検出効率が得られることに着目し、本研究において初めてこれを用いた中性子捕獲断面積測定用の全エネルギー吸収型ガンマ線検出器を試作し、実験と解析によりその特性を明らかにした。得られた結果をまとめると、

- (1) 1.5 l の BGO は全エネルギー吸収型検出器として満足できるパルス波高特性を有していることを、タンタル、金、鉄の捕獲ガンマ線カスケードに対する実験により確かめた。また、本検出器は1300 l の有機液体シンチレータと同程度以上のパルス波高特性を持つことを確認した。
- (2) 検出器の設計用にモンテカルロ計算コードを作成した。これを用いて捕獲ガンマ線に対する検出器の応答を計算した結果、各試料に対する実験の特徴をとらえていることが確認できた。検出効率など定量的には若干の改善を要するが、検出器の形状や容量などの設計に役立つ成果を得ることができた。
- (3) BGOシンチレータは散乱中性子に対して感度を有していることが分かったが、中性子エネルギー10 eV以下の領域では厚さ3 mm程度の ${}^6\text{LiF}$ タイルによる遮蔽によって、その影響を殆ど取り除けることが分かった。しかし、さらに高エネルギー領域の散乱中性子による影響を取り除くためには何らかの工夫が必要である。
- (4) 本研究において開発試作したBGO検出器と ${}^{10}\text{B}(n, \alpha \gamma)$ 反応を組み合わせた測定系では、入射中性子束を1.5%以上の精度で求めることが可能である。

[参考文献]

- /1/ S. Yamamoto, Y. Fujita, T. Shibata and S. Selvi : Nucl. Instrum. Meth., **A249**, 484 (1986).
- /2/ W.P. Poenitz and G. de Saussure : Progress Nucl. Energy **13**, 129 (1984).
- /3/ W.P. Poenitz : Proc. NEANDC/NEACRP Specialist's Meeting on Fast-Neutron Capture Cross Section, Argonne National Laboratory NEANDC(US)-214/L p.288 (1983).
- /4/ R.E. Chrien, (Ed.) : "*Neutron Physics and Nuclear Data in Science and Technology*", "*Neutron Radiative Capture*", Vol.3 OECD/NEA, Pergamon Press, (1984).
- /5/ G.F. Knoll : "*Radiation Detection and Measurement*", John Wiley & Sons, p.257 (1979).
- /6/ IAEA Technical Series No.227, "*Nuclear Data Standards for Nuclear Measurements*", IAEA, Viena (1983).
- /7/ K. Kobayashi, G. Jin, S.Yamamoto, K. Takami, Y. Kimura, T. Kozuka and Y. Fujita : Annu. Rep. Res. Reactor Inst., Kyoto Univ., **22**, 142 (1987).
- /8/ T. Kobayashi and K. Kanda : KURRI-TR-198 (1980).
- /9/ "*Reactor Physics Constants*", ANL-5800, (2nd ed.), USAEC, p.631(1963).
- /10/ C.M. Lederer and V.S. Shirley,(Ed.) : "*Table of Isotopes*" 7th edition, John Wily & Sons (1978).
- /11/ W. P. Poenitz : "*Review of Measurement Techniques for the Neutron Radiative Capture Process*", ANL/NDM-58 (1981).
- /12/ S. F. Mughabghab, M. Divadeenam and N. E Holden : "*Neutron Cross Sections*" Vol.1, Neutron Resonance Parameters and Thermal Cross Sections, Academic Press, Inc., New York (1981).

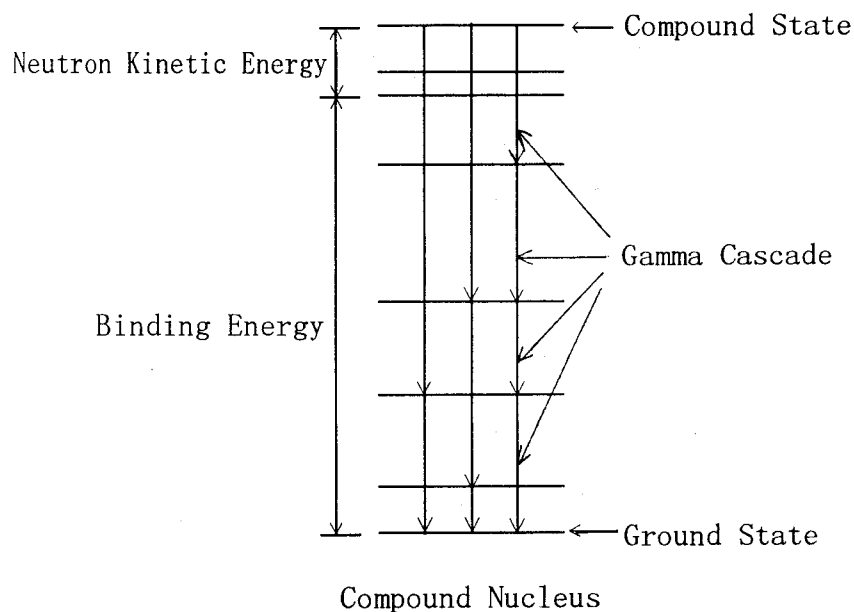


Fig. 2-1. Decay scheme of gamma ray cascade in a compound nucleus.

Table 2-1. Comparison of scintillators

Scintillator	BGO (Nonhygroscopic crystal)	NaI (Tl) (Hygroscopic crystal)	Organic (NE224) (Liquid)
Wave length of max. emission (nm)	480	410	425
Decay constant (ns)	300	230	2.6
Refractive index	2.15	1.85	1.5
Scintillation efficiency (%)	8	100*	35
Specific Gravity	7.13	3.67	0.89
Neutron capture cross sections of constituents (barn)/12/	²⁰⁹ Bi : 0.03 0.2	²³ Na : 0.53 0.31	H : 0.33 0.15
Thermal neutron cross section, followed by res- onance integral	Ge : 2.3 6.0	¹²⁷ I : 6.2 147	

* The scintillation efficiency of NaI (Tl) is normalized to 100%

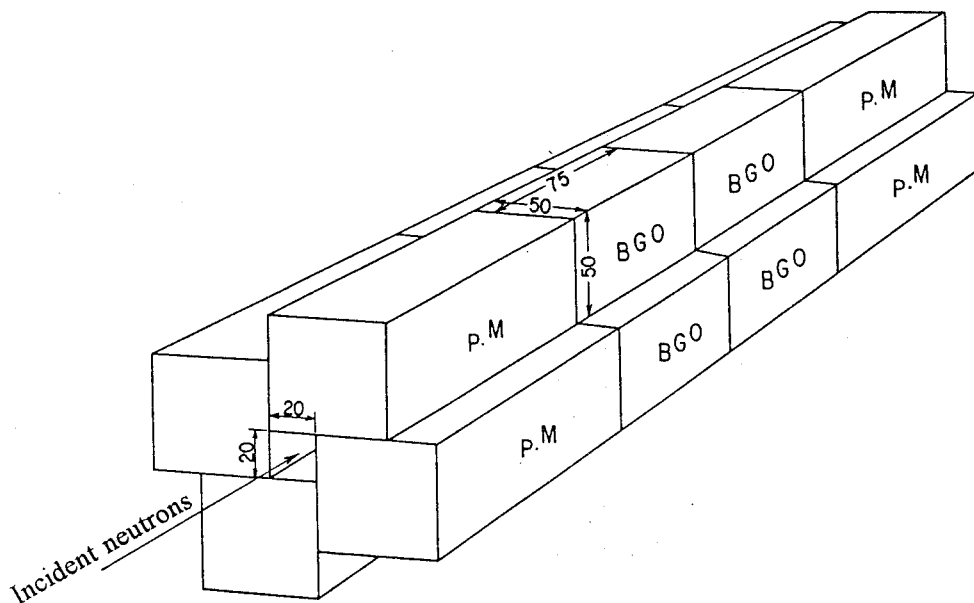


Fig. 2-2. Outside view of the BGO detector assembly. Eight 5cm x 5cm x 7.5cm scintillator bricks are equipped with respective photomultipliers, and a capture sample is placed at the center of 2cm square through hole.

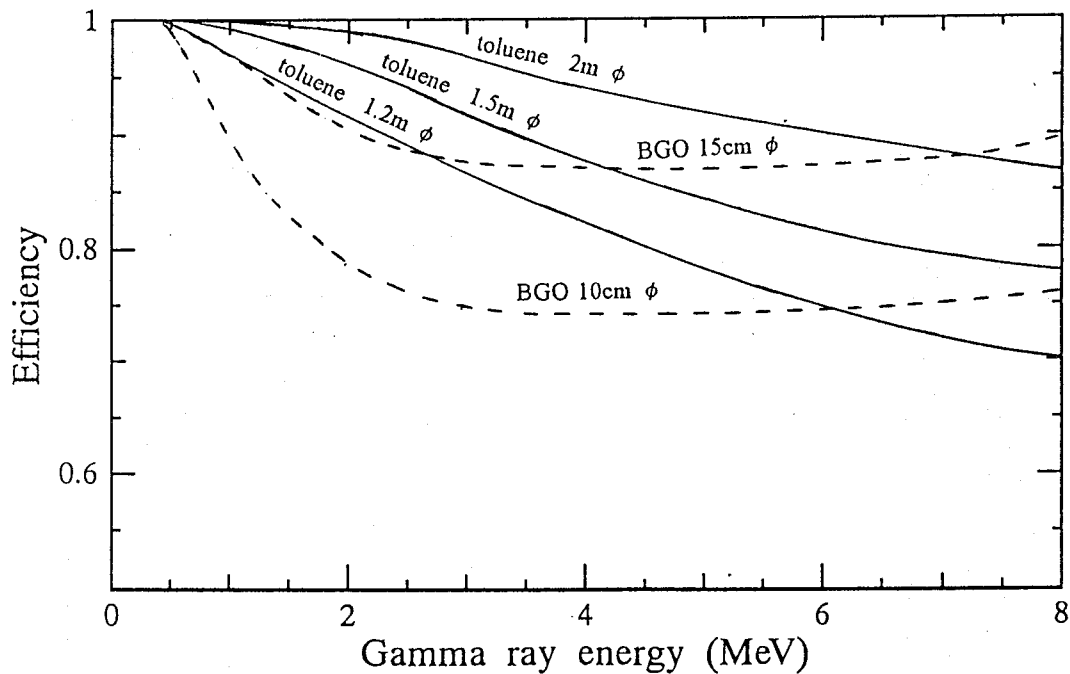


Fig. 2-3. Calculated efficiencies of BGO and organic liquid scintillators for monoenergetic gamma rays emitted isotropically at the center of spherical scintillator.

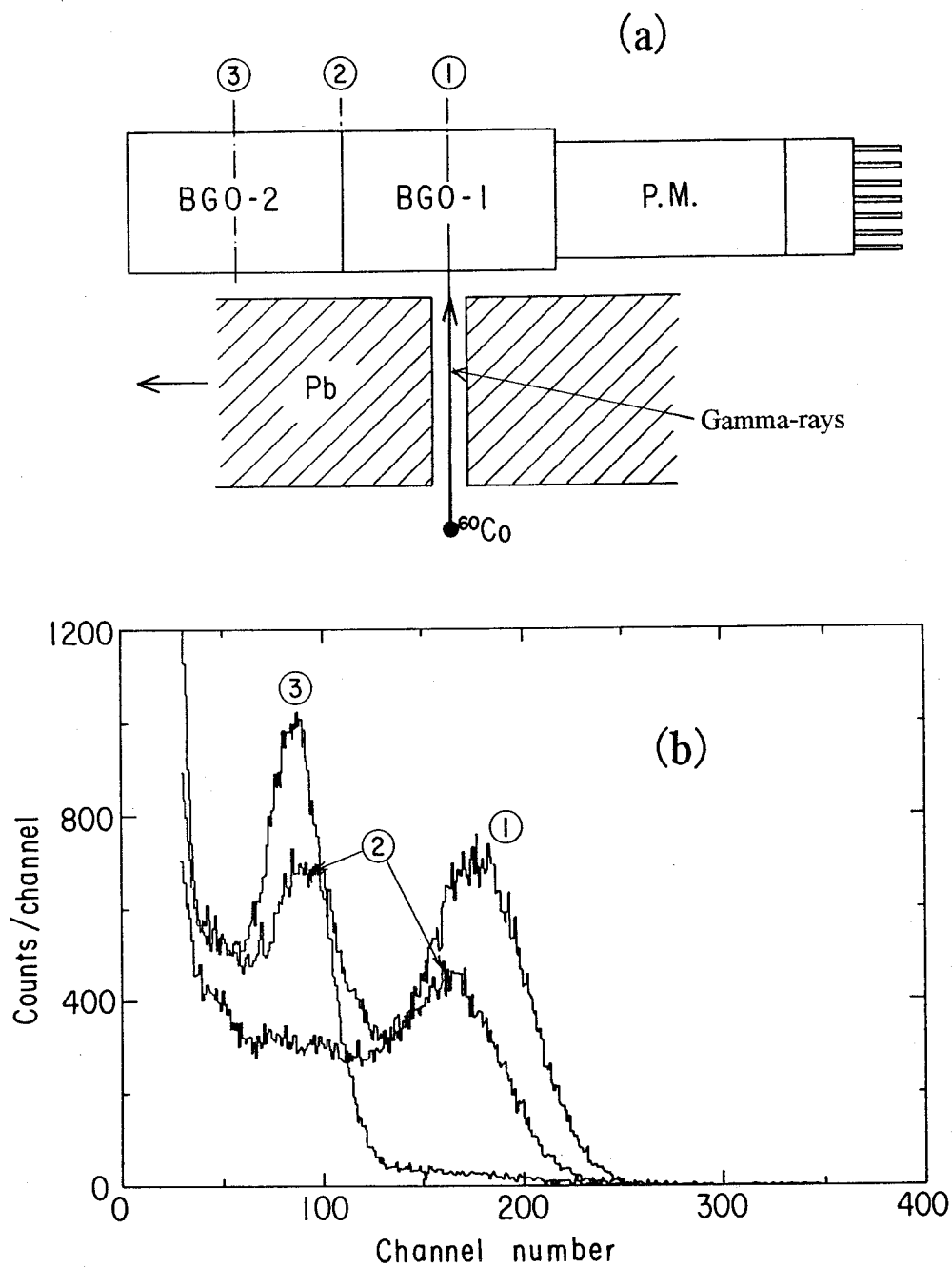


Fig. 2-4. (a)Experimental arrangement for the attenuation study of the light collection efficiency due to the presence of an adhesive layer between the scintillator bricks. (b)Gamma ray pulse height spectra at the positions ①,② and ③. The numbers correspond to the positions where a Cobalt 60 gamma-ray source is set in Fig.2-4(a).

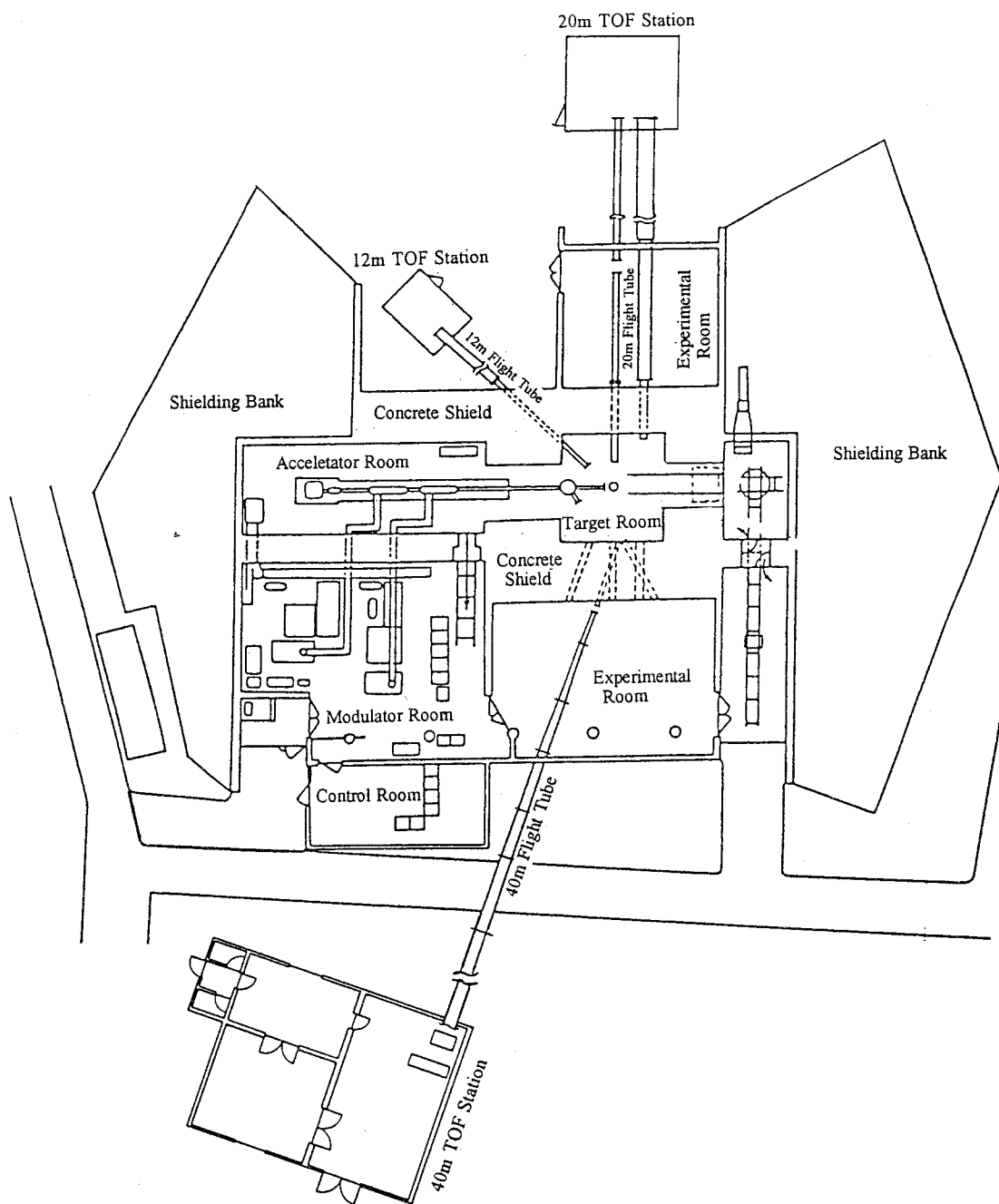


Fig. 2-5. Horizontal view of the LINAC building and neutron flight tubes.

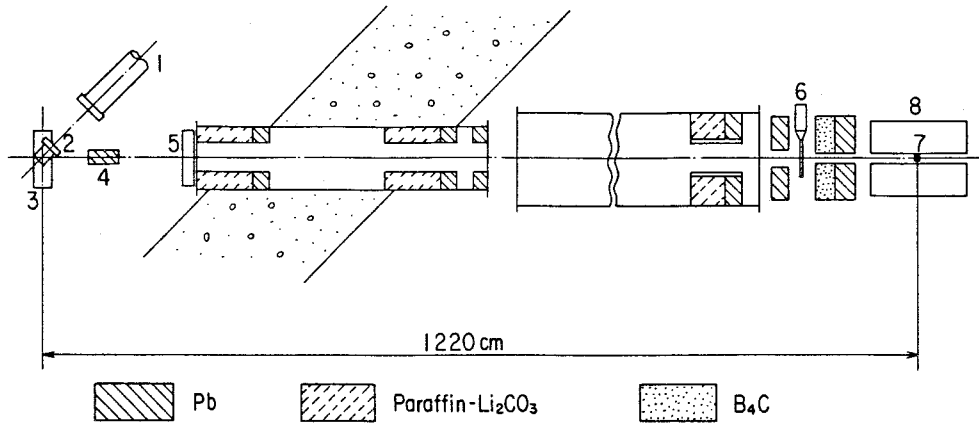


Fig. 2-6. Experimental arrangement of the time-of-flight measurement at a 12m detector station installed at the KURRI electron linac facility. (1) KURRI-linac, (2) water cooled Ta photoneutron target, (3) polyethylene moderator, (4) Pb-shadow shield, (5) S filter, (6) BF_3 counter, (7) sample, (8) scintillator.

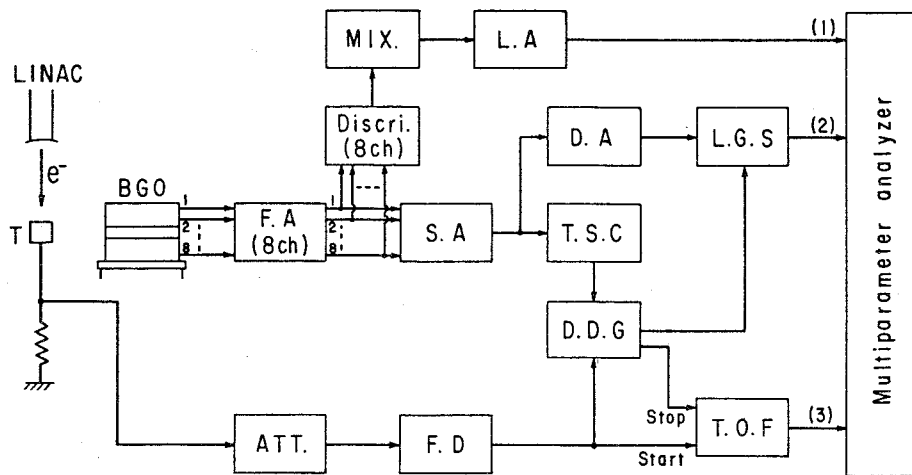


Fig. 2-7. Block diagram of the data acquisition system. Signals (1), (2), (3) are the number of scintillator bricks responded to a capture event, sum of the linear pulse signals of eight bricks and neutron time-of-flight. FA: fast amplifier, SA: sum amplifier, MIX: mixer, ATT: attenuator, FD: fast discriminator, LA: linear amplifier, DA: delay amplifier, TSC: timing single channel analyzer, DDG: digital delay and gate, LGS: linear gate and stretcher, TOF: time-of-flight unit.

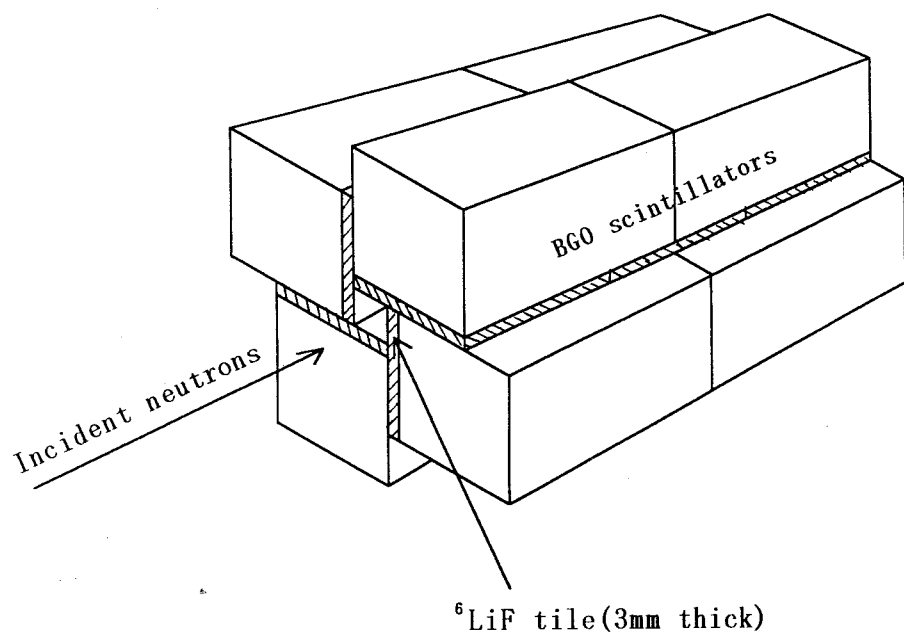


Fig. 2-8. BGO scintillators shielded by ^6LiF tiles.

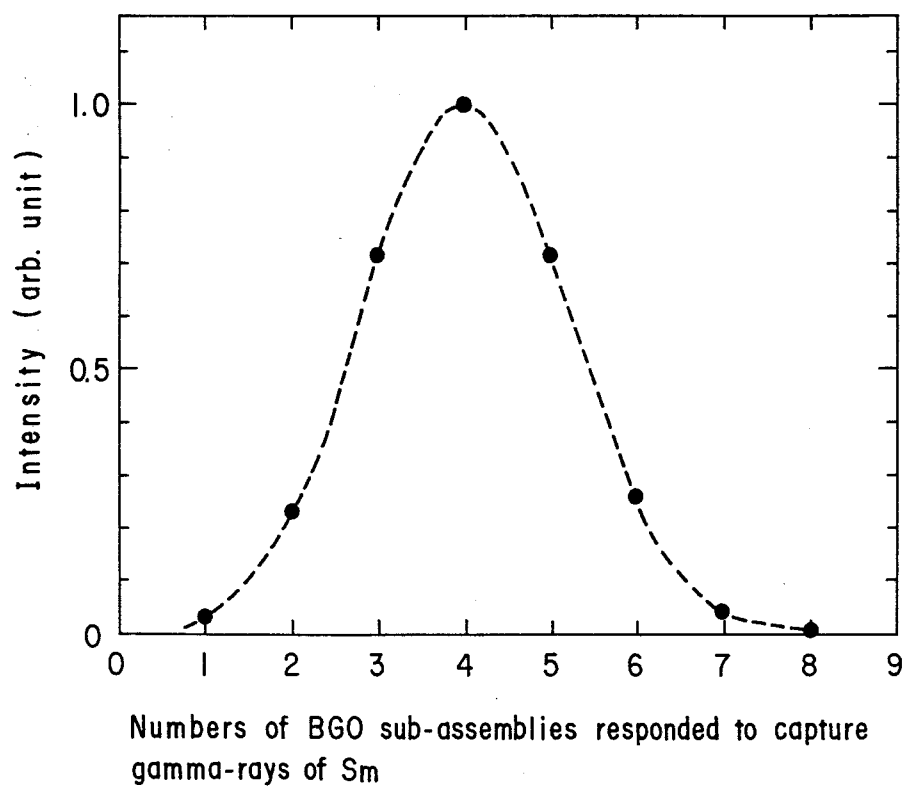


Fig. 2-9. Frequency distribution of the number of BGO sub-assemblies responded to capture gamma-ray of Sm.

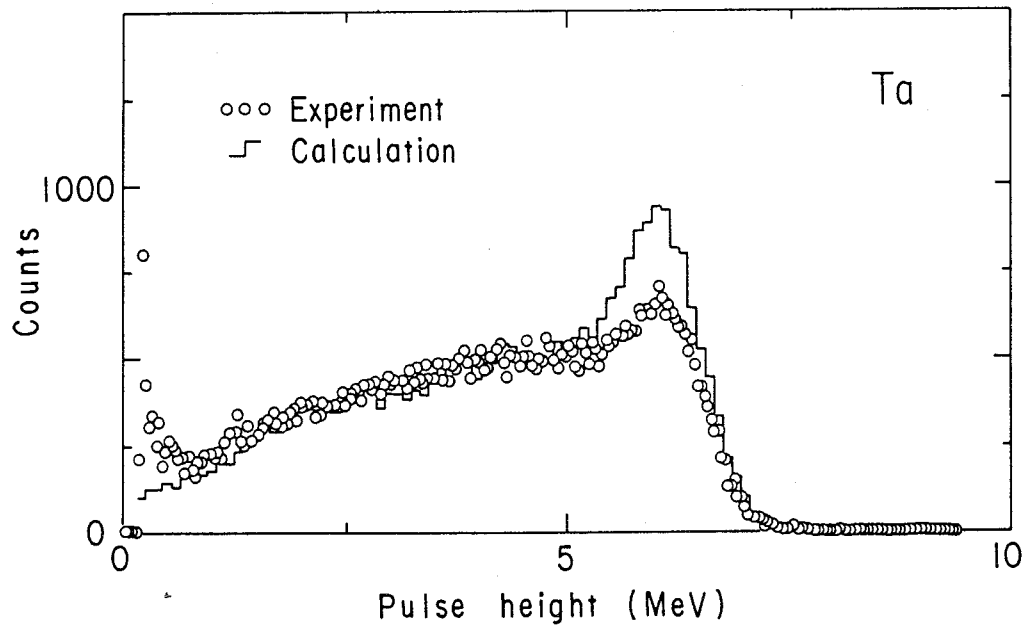


Fig. 2-11. Pulse height response to thermal neutron capture for Ta. Solid line shows the calculation with a Monte Carlo code.

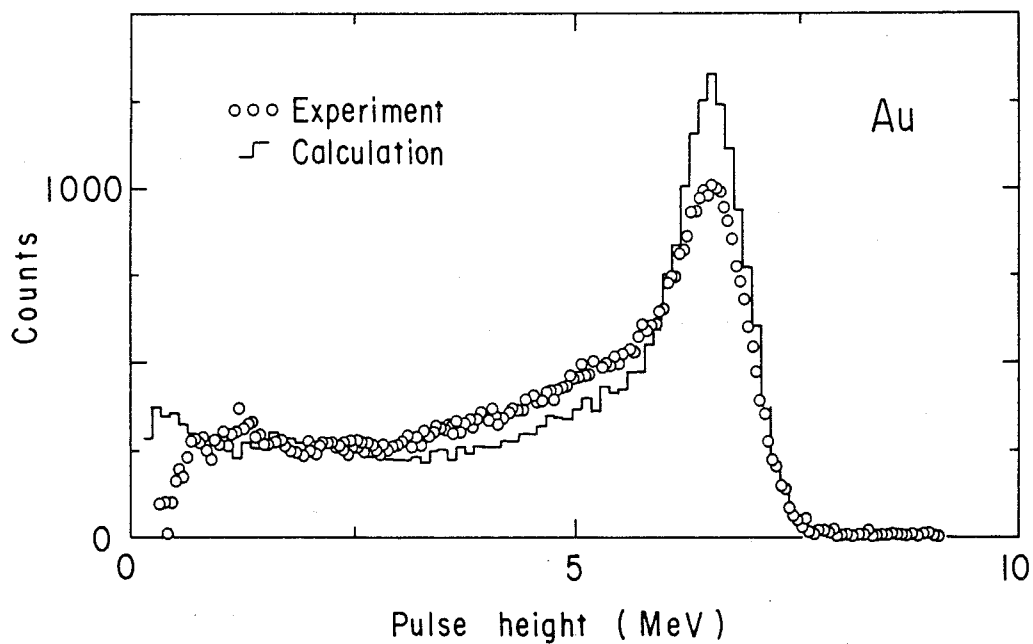


Fig. 2-12. Pulse height response to thermal neutron capture for Au. Solid line shows the calculation with a Monte Carlo code.

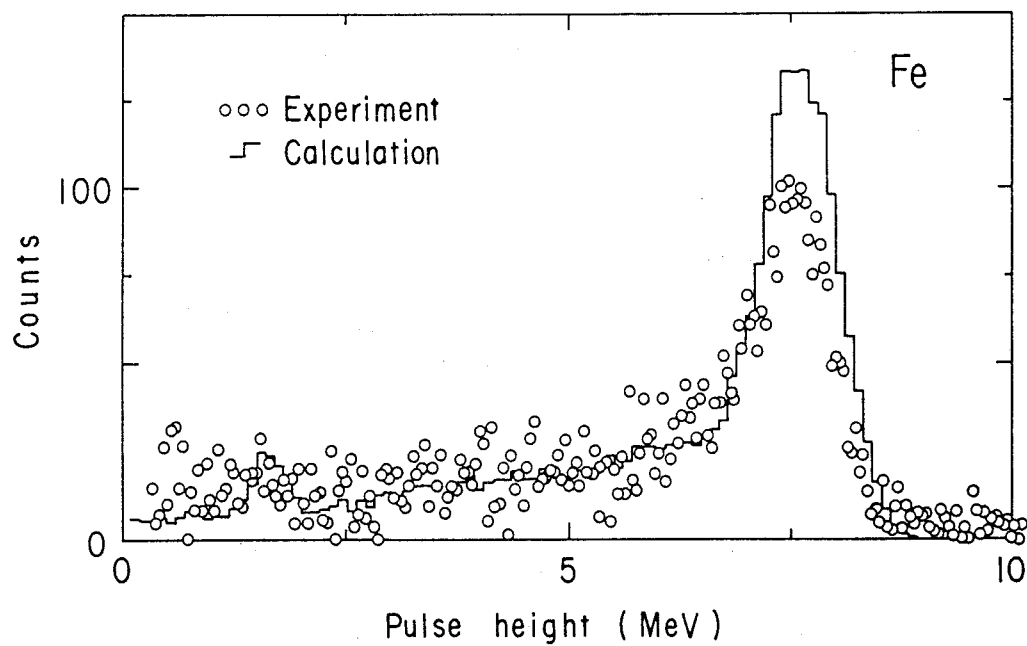


Fig. 2-13. Pulse height response to thermal neutron capture for Fe. Solid line shows the calculation with a Monte Carlo code, where the response is calculated for ^{56}Fe only.

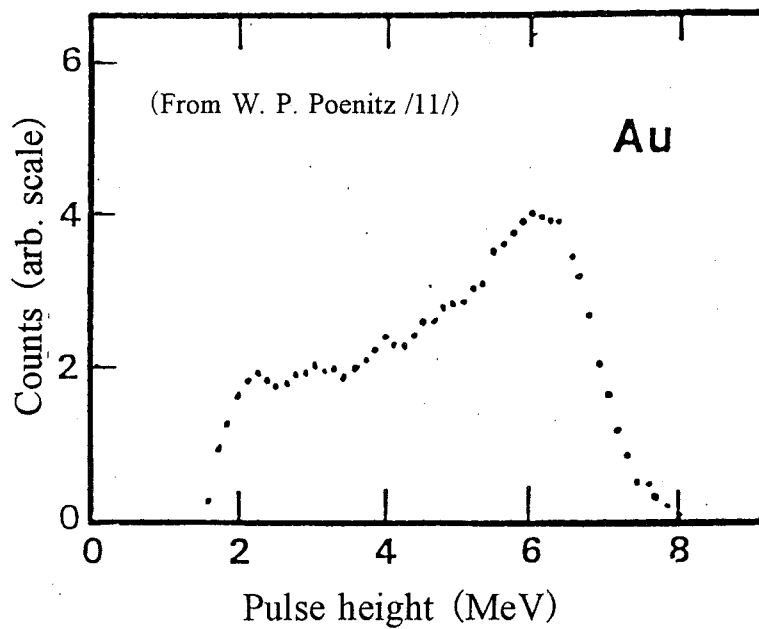


Fig. 2-14. Pulse height response obtained with a large liquid scintillation detector (1300 l) for $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$

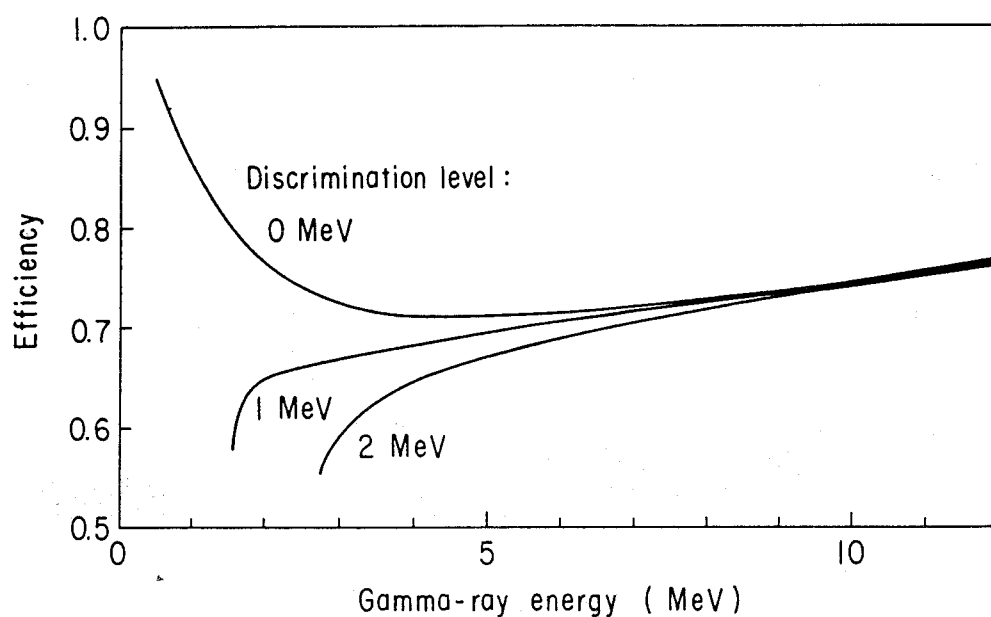


Fig. 2-15. Calculated efficiency of the BGO detector assembly shown in Fig.2-2 for monoenergetic gamma rays emitted isotropically at the center position of the through hole.

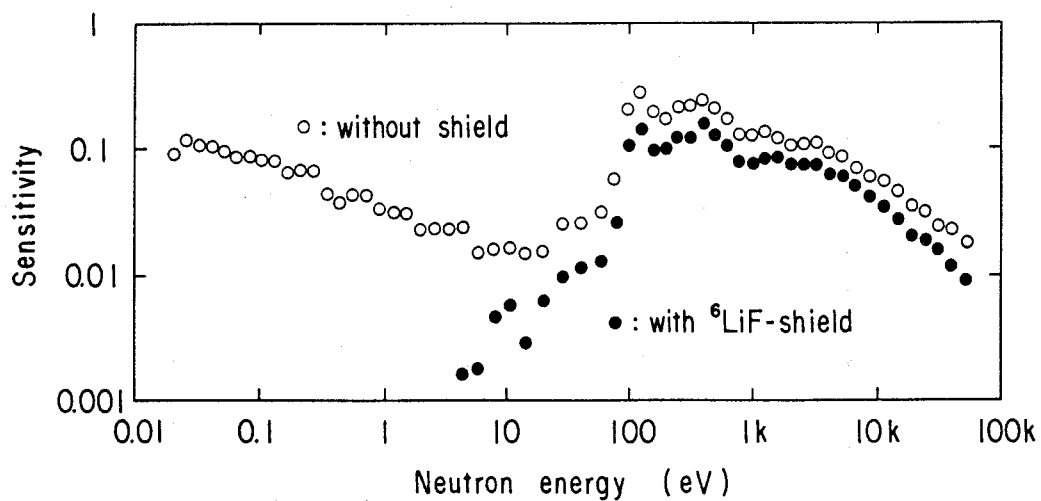


Fig. 2-16. Sensitivity of the BGO assembly to neutrons scattered with a capture sample placed at the center of the through hole. The data points of the solid circles are taken by adding a ^6LiF shield as explained in the text.

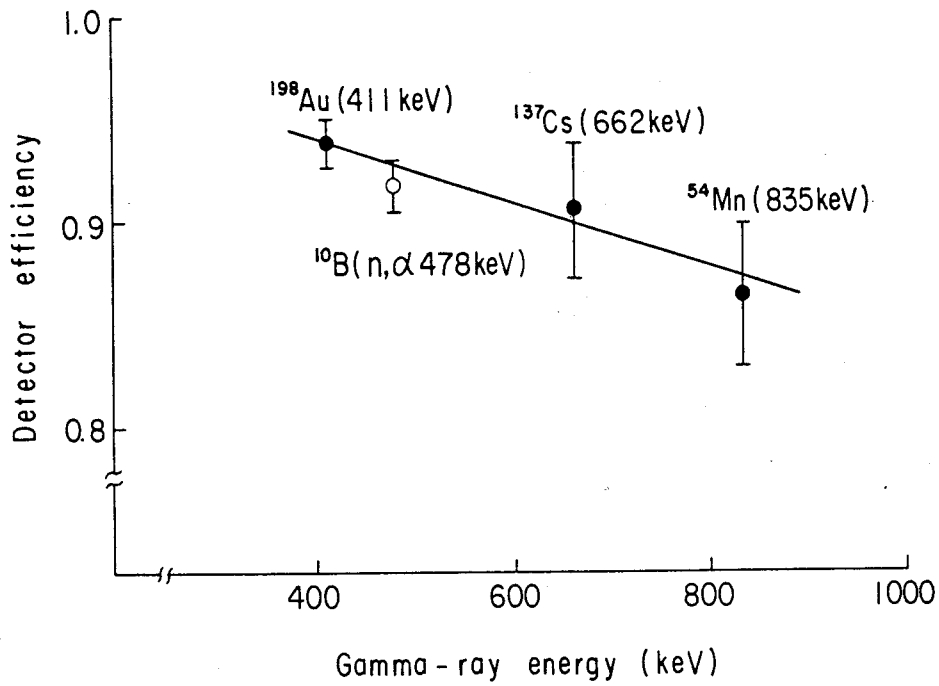


Fig. 2-17. Experimental results in the determination of the efficiency of the BGO assembly for 478keV gamma ray from the $^{10}\text{B}(n, \alpha \gamma)$ reaction. \bullet : Calibration by standard gamma ray source, \circ : Calibration by $^{10}\text{B}(n, \alpha \gamma)$ reaction.

第3章 BGO検出器を用いた中性子捕獲断面積 絶対測定法の研究

第3章 BGO検出器を用いた中性子捕獲断面積絶対測定法の研究⁽¹⁾

第1節 緒 言

中性子捕獲断面積の測定結果は中性子全断面積測定の結果に比べると、核種や中性子エネルギー領域によっては必ずしも工学的な利用面での要求に十分応えられるまでには至っていない。このことは、それだけ中性子捕獲断面積測定の難しさを意味しているとも言える。

中性子捕獲断面積の測定は、古くより中性子捕獲によって生じた核の誘導放射能測定、球殻透過法、原子炉に試料を挿入した時の反応度変化の測定などによって行われてきたが、これ等は概して、あるエネルギースペクトルをもった中性子場の平均値として求められる。近年では放射化法の他に、主として単色中性子源を利用するか、中性子飛行時間分析法と中性子捕獲即発ガンマ線の測定法を組み合わせた実験手法によって、中性子エネルギーに依存した捕獲断面積の測定が行われている。即発ガンマ線は中性子が試料に捕獲されて生じた励起複合核が基底状態に遷移するときに多数の即発ガンマ線が種々のカスケードモードの下に放出される^{/2/}。従って、捕獲事象の絶対量を測定するためには、このカスケードモードに依存しない手法に依らなければならない。第1章において述べたように、このような条件を満たす測定法として、これまでは大型液体シンチレータタンク^{/3/}、Moxon-Rae型検出器^{/4/}、パルスハイトウエイティング法^{/5/}が用いられてきた。

本章では、今回新しく開発試作し、第2章に特性を示した全エネルギー吸収型 $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ (BGO) 検出器を中性子捕獲断面積の絶対測定に応用した測定方法と測定結果について述べる。実験には12個のBGOシンチレータを集合体状に積み重ねた全エネルギー吸収型ガンマ線検出器を用いて飛行時間分析法により0.01～10 eVにおける金 (Au) 及びアンチモン (Sb) の中性子捕獲断面積の絶対測定

を行った。まず、サマリウム (Sm) 試料と BGO 検出器を組み合わせることにより、入射熱中性子束の絶対値を測定した後、ボロン-10 (^{10}B) 試料を用いて中性子検出効率の較正を行った。中性子捕獲事象の絶対測定では、大きな共鳴付近で試料による捕獲収率が飽和することを利用して検出器系を較正している。これらの手法を用いて代表的な標準中性子断面積/6/のひとつである $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ 反応断面積の絶対測定を行った。測定結果は、JENDL Dosimetry File/7/や ENDF/B-VI/8/の評価値とよい一致を見た。このことによって、BGO 検出器系は中性子捕獲断面積の絶対測定に十分適用できることが確認できたとして、次に、Au に比べて散乱対捕獲断面積比 (σ_s/σ_c) の大きい Sb の $\text{Sb}(n, \gamma)$ 反応断面積の絶対測定に本 BGO 検出器系を適用した。

第2節 実験方法

2-1 試料

本捕獲断面積測定においては、実験試料へ入射する中性子束モニターと試料中で起こる捕獲事象数を同一の検出器系で測定することとした。このため、中性子束モニター用試料として、Sm と ^{10}B 試料を用意した。

Sm 試料は、検出器へ入射する熱中性子束の絶対測定に使用するもので、大きさ $1.8 \times 1.8 \text{ cm}^2$ 、厚さ 0.5 mm の金属板でその純度は 99.8% である。Sm は熱中性子に対する捕獲断面積が大きく (5670 b)、用意した試料は熱中性子に対して十分ブラックとみなせる厚さである。Fig. 3-1 に示した BGO 検出器の貫通孔中央に本試料を置いて、この試料位置における入射熱中性子束の絶対値を測定する。

エネルギー依存中性子束の測定は、Sm 試料に替えて ^{10}B 試料を用いた。 ^{10}B 試料は厚さ 0.2 mm のアルミニウム容器に濃縮度 90.4% の粉末状 ^{10}B を充填して使用している。アルミニウム容器の形状は、大きさ $1.8 \times 1.8 \text{ cm}^2$ 、厚さ 8 mm で、粉末試料の厚さは 1.102 g/cm^2 であった。 ^{10}B 試料も低エネルギー中性子領域においてはその断面積が大きく ($2,200 \text{ m/s}$ 中性子に対して 3837 b)、本実験に用いる ^{10}B 試料の厚さは 10 eV 以下のエネルギーを持つ中性子に対してブラックとみ

なすことができる。

捕獲断面積測定用の Au 試料は、大きさ $1.8 \times 1.8 \text{ cm}^2$ 、厚さ 0.716 g/cm^2 の板状で、純度は 99.999 % である。Sb 試料（純度：99.9 % 以上）は、厚さ 0.2 mm のアルミニウム容器に粉末アンチモンを充填、製作したもので、その形状寸法は、大きさ $1.8 \times 1.8 \text{ cm}^2$ 、厚さ 5 mm で、粉末試料としての厚さは 1.843 g/cm^2 である。

2-2 BGO 検出器の構造

本実験では、Fig. 3-1 に示したように、大きさ $5 \times 5 \times 7.5 \text{ cm}^3$ の BGO シンチレータ（日立化成工業株式会社製）を 12 個用意し、それぞれに光電子増倍管（R580、浜松ホトニクス株式会社製）を取り付けて、これを積み重ね、断面 $2.7 \times 2.7 \text{ cm}^2$ の中性子ビーム入射用の貫通孔を持つ構造とした。この場合、シンチレータの全容量は 2.25 l となる。中性子ビームはコリメートされ、貫通孔を通して検出器中央部にセットされた捕獲事象測定用試料に導かれる。また試料で散乱された中性子が BGO シンチレータへ入射するのを防ぐため、貫通孔の内面は厚さ 3 mm の ^6LiF タイルで覆っている/9/。これにより 10 eV 以下の中性子をほぼ完全に遮蔽することができた/10/。さらに、周囲からのバックグラウンドを低減するため、この BGO 検出器系全体は厚さ 5~10 cm の鉛製遮蔽体内に収納している。

2-3 実験配置

Au 及び Sb に対する中性子捕獲断面積は、京都大学原子炉実験所付設の 46 MeV 電子線形加速器（ライナック）を用いた中性子飛行時間（TOF）分析法により測定した。その実験配置を Fig. 3-2 に示す。本実験ではライナックの電子ビームに対して 135 度方向に設置された 12.7 m 飛行路を使用した。飛行管内部はロータリーポンプにより常時真空（ 10^{-2} torr 以下）に保った。パルス状中性子発生用タンタルターゲットから BGO 検出器内の中央の試料位置に至る中性子飛行距離は $12.7 \pm 0.01 \text{ m}$ である。中性子コリメータは、 B_4C 、 Li_2CO_3 、Pb の材料によって

製作した。飛行管入口周辺のコリメータの直径は約 12 cmで、その後順次絞られてBGO検出器の入口前では、中性子ビームは最終的に直径 1.5 cmに絞り試料に入射する。捕獲試料及び中性子束モニター用 Sm 、 ^{10}B 試料はサンプルチェンジャーによりBGO検出器貫通孔の中央部にセットした。実験中の中性子ビーム強度の変動は、Fig. 3-2 に示すように、飛行路中に挿入した BF_3 比例計数管によりモニターできるようにした。

2-4 パルス状中性子源

パルス状の高速中性子は、ライナックで加速された電子ビームを水冷タンタル (Ta) ターゲットに当てることにより発生させた。ターゲットの寸法は、直径 5 cm、長さ6.1 cmで12枚のタンタル板 (1~5 mm : 厚さの合計29 mm) で構成した^{/11/}。発生した高速中性子は、隣接して置かれた厚さ10 cm、直径約30 cm 断面の水タンクに入射し、減速してタンク表面から放出される。この時、タンタルターゲットから出る強力なガンマフラッシュが直接BGO検出器に入らないよう、飛行管入口前の軸上に鉛製のシャドウシールド(断面 : 5 x 5 cm²、長さ : 20 cm)を配置した。

測定中のライナック運転条件は、パルス幅 : 3 μs 、繰り返し返し : 50 Hz、加速電子のエネルギー : 33 MeV、ピーク電流 : 0.8 Aであった。12.7 m 飛行路を用いたTOF測定では、1つ前の電子バーストで発生した熱中性子が、次のバーストで生じる中性子とオーバーラップすることがないようにライナックのパルス間隔を選び、繰り返し率を50 Hzとした。

2-5 測定回路系

実験に使用した測定系のブロック図を、Fig. 3-3 に示す。12個のBGO検出器それぞれからの出力信号は、増幅器と波高弁別器を経て同時計数回路に入る。この同時計数回路は、2個以上の入力パルスが同時に計測された場合に、1個の出力パルスを発生するように設計されている。中性子捕獲の際に放出される即発ガンマ線は同時に複数本が出るので、同時計数法の採用は捕獲事象の計数において

信号／雑音比の改善に役立つ。しかし、 ^{10}B 試料を使った $^{10}\text{B}(\text{n}, \alpha \gamma)$ 反応では、478 keV のガンマ線が 1 本放出されるのみであるため、同時計数法は使用できない。ターゲットからの電流パルスを用いた TOF 実験用のスタートパルスとし、同時計数回路の出力パルスをストップパルスとして時間分析器に導き、PDP-11/34 計算機に接続されたキャンベラ社製 88 シリーズ、マルチパラメータ分析器を用いて TOF データを収集した。4 つの試料 (Au、Sb、 ^{10}B 、Sm) をサンプルチェンジャーで順次交換しながら測定を行い、各試料に対する TOF データ (1024 チャンネル) はそれぞれ指定された収納領域に記録した。同様に、測定中の各試料へ入射する中性子束の強度変化をモニターするために、飛行路中に挿入した BF_3 比例計数管からの TOF 信号も各試料に対応した指定領域に収納した。中性子束モニターの計数値は、各サンプルに対する測定データ間の規格化に使用されるもので、中性子捕獲断面積の測定対象としたエネルギー領域にほぼ相当する領域のカウント数を積分することにより得た。

本実験におけるバックグラウンドは、 BF_3 比例計数管と BGO 検出器の間の飛行路中に ^{10}B プラグ (厚さ : 1.11 g/cm²) を置くことにより、試料へ入射する中性子ビームを遮蔽する方法により測定した。

第 3 節 中性子捕獲収率の絶対測定

3-1 熱中性子束の絶対測定

中性子捕獲断面積の測定においては、試料に入射する中性子束を求める必要がある。本研究では、まず、Sm を用いることにより熱中性子束の絶対測定を行った。BGO 検出器を用いた Sm 試料の熱中性子捕獲事象の計数率は、次式で与えられる。

$$C_{\text{Sm}}(E_{\text{th}}) = \varepsilon_{\text{Sm}}(E_{\text{th}}) Y_{\text{Sm}}(E_{\text{th}}) \phi(E_{\text{th}}) \quad (1)$$

ここで、添え字 Sm はサマリウム、th は熱中性子、 C は計数率、 E は中性子エネルギー、 ε は捕獲事象の検出効率、 Y は捕獲収率、 ϕ は入射中性子束を表し

ている。Sm 試料に入射する熱中性子は散乱されずにほぼ完全に捕獲されるので、熱中性子に対する捕獲収率は $Y_{sm}(E_{th})=1$ となる。また、Sm は捕獲ガンマ線の多重度が大きい（捕獲あたり放出されるガンマ線の平均本数=5.6）ので、BGO 検出器による Sm 試料からの捕獲ガンマ線測定において捕獲事象を検出し損なう確率は極めて小さく $\epsilon_{sm}(E_{th})=1$ となる。これらの関係については、BGO 検出器の特性に関連して第2章ですでに述べている。以上のことから、(1) 式は

$$C_{sm}(E_{th}) = \phi(E_{th}) \quad (2)$$

となる。(2) 式は、Sm 試料と組み合わせたBGO検出器の計数率がそのまま試料へ入射する熱中性子の数に等しいことを示している。

3-2 中性子検出効率の較正

既を示したように、 $^{10}\text{B}(n, \alpha \gamma)$ 反応は熱中性子断面積が大きいいため、本実験に用いる ^{10}B 試料も熱中性子に対してブラックと見なせる ($Y_B(E_{th})=1$) ので、次の関係式が得られる。

$$C_B(E_{th}) = \epsilon_B(E_{th})Y_B(E_{th})\phi(E_{th}) = \epsilon_B(E_{th})\phi(E_{th}) \quad (3)$$

ここで、添え字 Bは ^{10}B を意味する。(2) 式と (3) 式から、熱中性子捕獲に対する検出効率 $\epsilon_B(E_{th})$ は、次式のとおり導かれる。

$$\frac{C_B(E_{th})}{C_{sm}(E_{th})} = \epsilon_B(E_{th}) = \epsilon_B \quad (4)$$

ここで重要なことは、 $^{10}\text{B}(n, \alpha \gamma)$ 反応が起こった際に放出されるガンマ線は 478 keV 1 本だけであるため、熱中性子に限らず全てのエネルギーの中性子捕獲に対する検出効率は同じ値 ϵ_B になるということである。従って、あるエネルギー E の中性子束 $\phi(E)$ は、 ϵ_B を使って次式により得ることができる。

$$C_B(E) = \varepsilon_B Y_B(E) \phi(E) \quad (5)$$

本実験の対象とした10 eV以下の中性子エネルギー領域では、厚さ1.102 g/cm²の¹⁰B試料は熱中性子の場合と同様、捕獲収率を $Y_B(E)=1$ と与えることができるため、(5)式はさらに簡単化され次式のようになる。

$$C_B(E) = \varepsilon_B \phi(E) \quad (6)$$

この場合、 $^{10}\text{B}(n, \alpha \gamma) / \{^{10}\text{B}(n, \alpha \gamma) + ^{10}\text{B}(n, \alpha)\}$ の値が測定エネルギー領域において一定となる必要があるが、これについては文献/6/によって確認できる。

3-3 捕獲収率

中性子の捕獲収率を測定するためには、入射中性子束と共に捕獲事象に対する検出効率が必要である。ここでは、試料の持つ捕獲断面積の大きな共鳴を利用して検出効率を決定した。従って、本方法による測定が可能となる試料は、共鳴エネルギー付近で捕獲収率が1となるような大きな共鳴を持つ試料に限られる。

Auは4.9 eVに大きな共鳴を持ち、測定に用いた厚さ0.716 g/cm²の試料の場合、共鳴エネルギー近傍で捕獲収率は飽和する($Y_{Au}(E_R) = 1$)ので(7)式が得られる。

$$\begin{aligned} C_{Au}(E_R) &= \varepsilon_{Au}(E_R) Y_{Au}(E_R) \phi(E_R) \\ &= \varepsilon_{Au}(E_R) \phi(E_R) \end{aligned} \quad (7)$$

ここで、 E_R は共鳴エネルギーを意味し、共鳴エネルギーの中性子束 $\phi(E_R)$ は¹⁰B試料による中性子束測定から得ることができるので $\varepsilon_{Au}(E_R)$ の値は容易に求めることができる。本測定では、BGO検出器のAu試料に対する捕獲事象の検出

効率は $\varepsilon_{\text{Au}}(E_R)=0.76$ であった。

BGO 検出器は全エネルギー吸収型検出器であるため、Au 試料による捕獲事象の検出効率 $\varepsilon_{\text{Au}}(E_R)$ は入射中性子のエネルギーが変わっても変化しないと見なして、次式が導かれる。

$$\varepsilon_{\text{Au}} = \varepsilon_{\text{Au}}(E_R) \quad (8)$$

エネルギー E の中性子に対する Au の中性子捕獲事象計数率は次式で与えられる。

$$C_{\text{Au}}(E) = \varepsilon_{\text{Au}} Y_{\text{Au}}(E) \phi(E) \quad (9)$$

上式に (6) 式から求まる $\phi(E)$ を代入すると、Au 試料の捕獲収率 $Y_{\text{Au}}(E)$ は次式によって得られる。

$$Y_{\text{Au}}(E) = \frac{C_{\text{Au}}(E) \varepsilon_{\text{B}}}{C_{\text{B}}(E) \varepsilon_{\text{Au}}} \quad (10)$$

Sb 試料の場合もまた、6.3 eV に大きな共鳴を持ち、飽和共鳴法が適用できる。Au 試料の場合と同様に、Sb 試料に対する検出効率 ε_{Sb} 及び捕獲収率 $Y_{\text{Sb}}(E)$ も (6) 式から (10) 式の関係によって得られる。本測定における Sb 試料に対する検出効率は $\varepsilon_{\text{Sb}}=0.91$ であった。

3-4 捕獲収率の補正

中性子捕獲収率から中性子捕獲断面積を導出する関係式は、次式で与えられる /12/。

$$Y_{\text{c}}(E) = \left\{ 1 - \exp(-N \sigma_{\text{total}}(E) t) \right\} \frac{\sigma_{\text{c}}(E)}{\sigma_{\text{total}}(E)} \frac{1}{f_{\text{c}}(E)} \quad (11)$$

ここで、 N は試料の原子密度、 $\sigma_{\text{total}}(E)$ は中性子全断面積、 t は試料の厚さ、 $\sigma_c(E)$ は中性子捕獲断面積、 $f_c(E)$ は試料中の中性子散乱に関する補正係数である。厚さ t が十分薄い場合には、(11) 式は次のように表せる。

$$Y_c(E) = N \sigma_c(E) t \quad (12)$$

中性子捕獲断面積の測定において、試料中で起こる中性子多重散乱の問題は重要である。中性子が試料中で散乱を起こすと中性子の試料中走行距離が長くなるため、試料中で起こる捕獲事象の数は散乱がない場合に比べて増すことになる。試料中における中性子の多重散乱の影響についてはモンテカルロコードを作成し、これを用いて計算した。計算の結果、中性子捕獲断面積測定における多重散乱の補正係数 $f_c(E)$ として、Au 試料に対して0.975～0.985、Sb 試料に対して0.965～0.971を得た。

第4節 結果及び検討

Auに対する中性子捕獲断面積の測定結果を評価済データ ENDF/B-VI/8/及び JENDL Dosimetry File/7/と共に Fig. 3-4 に示す。また、Table 3-1 には、表中に示したエネルギー範囲における各々の平均値を示している。実験誤差は、(1) 統計誤差0.3～1.5 %、(2) 中性子検出効率に対する誤差約1.5 %、(3) 捕獲事象の検出に伴う誤差約1.8 %、(4) 試料厚さに対する誤差約0.5 %、(5) 捕獲収率の補正誤差約0.3 %を考慮した。測定結果は評価済データ ENDF/B-VI 及び JENDL Dosimetry File と非常に良く一致している。このことは、本実験に使用したBGO検出器系並びにその実験手法が中性子捕獲断面積の絶対測定に十分適用できることを示している。

Sb の測定結果についても評価済データ ENDF/B-VI 及び JENDL-3.2/13/と比較して Fig. 3-5、Table 3-2 に示す。実験誤差は、統計誤差1.0～4.5 %と他の誤差

要因（検出効率、試料厚さ、捕獲収率の補正）に伴う誤差を含めて2.6 %～5.1 % となった。本測定による結果は、評価済データENDF/B-VI 及び JENDL-3.2と良い一致を示している。Sb は Au に比べて散乱対捕獲の断面積比(σ_s/σ_c)が大きく、測定上不利な条件を持つと考えられるが、本BGO検出器系を用いた中性子エネルギー10 eV以下での測定においては特に問題はないと言える。

第5節 結 言

BGO シンチレータを用いた全エネルギー吸収型ガンマ線検出器を試作し、これを電子線形加速器による中性子飛行時間分析法を用いた中性子捕獲断面積の絶対測定に適用した。本研究により明らかになった点をまとめると、

- (1) 熱中性子捕獲断面積が大きく、中性子捕獲の際放出する即発ガンマ線の多重度大きい Sm 試料に着目して、これを利用した熱中性子束の絶対測定法が確立できた。
- (2) 試料に入射する各エネルギー毎の（エネルギー依存）中性子束の測定には $^{10}\text{B}(n, \alpha \gamma)$ 反応を用いたが、この反応により放出される478keVガンマ線の検出効率の較正法を確立した。
- (3) Au や Sbなどは数 eV 領域に大きな共鳴ピークを持つため、このエネルギー一点では試料による捕獲収率が飽和することを利用して、これらの試料による中性子捕獲事象の検出効率を較正する方法を確立した。
- (4) これらの手法を、0.01～10eV領域における $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ 反応断面積の絶対測定に応用した。その結果、標準断面積の1つとして良く知られている $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ 反応断面積については、評価済データENDF/B-VI 及び JENDL Dosimetry Fileと極めて良く一致し、ここで試作したBGO検出器は全エネルギー吸収型の中性子捕獲断面積測定用検出器として、中性子捕獲断面積の絶対測定に十分適用できることが確認できた。
- (5) 次に、Au に比べて散乱対捕獲の断面積比(σ_s/σ_c)が大きく、測定上不利な条件を持つ Sb 試料を選び、当BGO検出器を用いて Sb の中性子捕

獲断面積測定を行った。その結果、評価済データENDF/B-VI及びJENDL-3.2は本測定値とよく一致することが分かった。

本研究を通じて、今回試作したBGO検出器系は、ライナックをパルス状中性子源とした飛行時間分析法による中性子捕獲断面積の絶対測定に十分適用できることが立証された。勿論、ライナック以外の中性子源による断面積測定への使用も可能であり、今後、全エネルギー吸収型検出器として中性子捕獲断面積の絶対測定への利用が期待できる。

[参考文献]

- /1/ S.Yamamoto, K.Kobayashi and Y.Fujita : J. Nucl. Sci. Technol., **33**[12], 815 (1996).
- /2/ R.E. Chrien, (Ed.) : *"Neutron Physics and Nuclear Data in Science and Technology"*,
"Neutron Radiative Capture", OECD/NEA, Pergamon Press, Vol.3 (1984).
- /3/ E.G. Silver, J.Lewin and J.Todd : Oak Ridge National Laboratory Report, ORNL 4280,
p.135 and ORNL 4433, p. 11 (1969).
- /4/ M.C. Moxon and E.R.Rae : Nucl. Instrum. Meth., **24**, 445 (1963).
- /5/ R.L.Macklin and J.H.Gibbons : Phys. Rev. **159**, 1007 (1967).
- /6/ IAEA Technical Series No.227, *"Nuclear Data Standards for Nuclear Measurements"*,
IAEA, Viena (1983).
- /7/ M.Nakazawa, K.Kobayashi, S.Iwasaki, T.Iguchi, K.Sakurai, Y.Ikeda and T.Nakagawa :
JENDL Dosimetry File, JAERI 1325 (1992).
- /8/ R.F. Rose (Compiled and Edited) : BNL-NCS-17541 (4th ed.) (ENDF/B-VI) (1991).
- /9/ T. Kobayashi and K. Kanda : KURRI-TR-198(1980).
- /10/ S. Yamamoto, Y. Fujita, T. Shibata and S. Selvi : Nucl. Instrum. Meth., **A249**, 484
(1986).
- /11/ K. Kobayashi, G. Jin, S.Yamamoto, K. Takami, Y. Kimura, T. Kozuka and Y. Fujita :
Annu. Rep. Res. Reactor Inst., Kyoto Univ., **22**, 142 (1987).
- /12/ H.W. Schmitt : ORNL-2883, 1-28-60 (1960).
- /13/ T. Nakagawa et al. : J. Nucl. Sci. Technol., **32**[12], 1259 (1995).

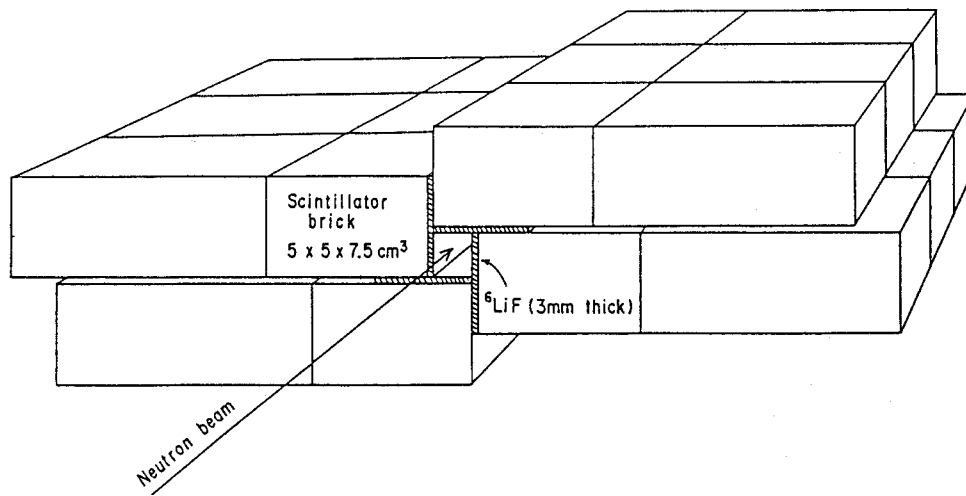


Fig. 3-1. BGO detector assembly.

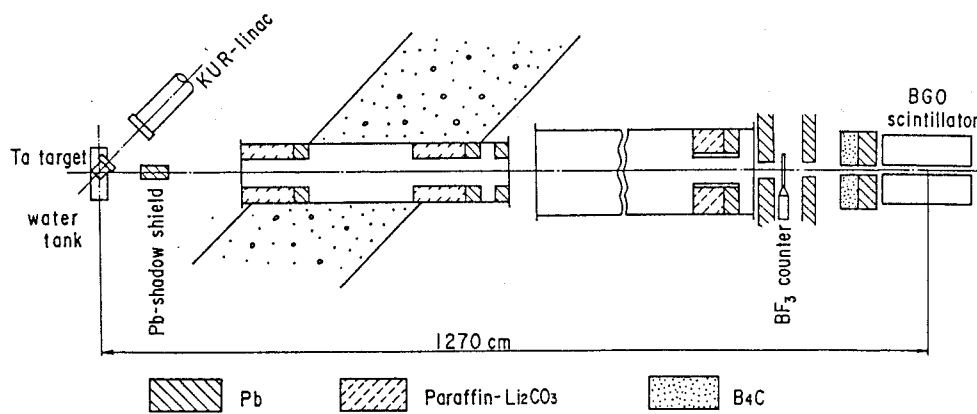


Fig. 3-2. Experimental arrangement for the capture cross section measurement.

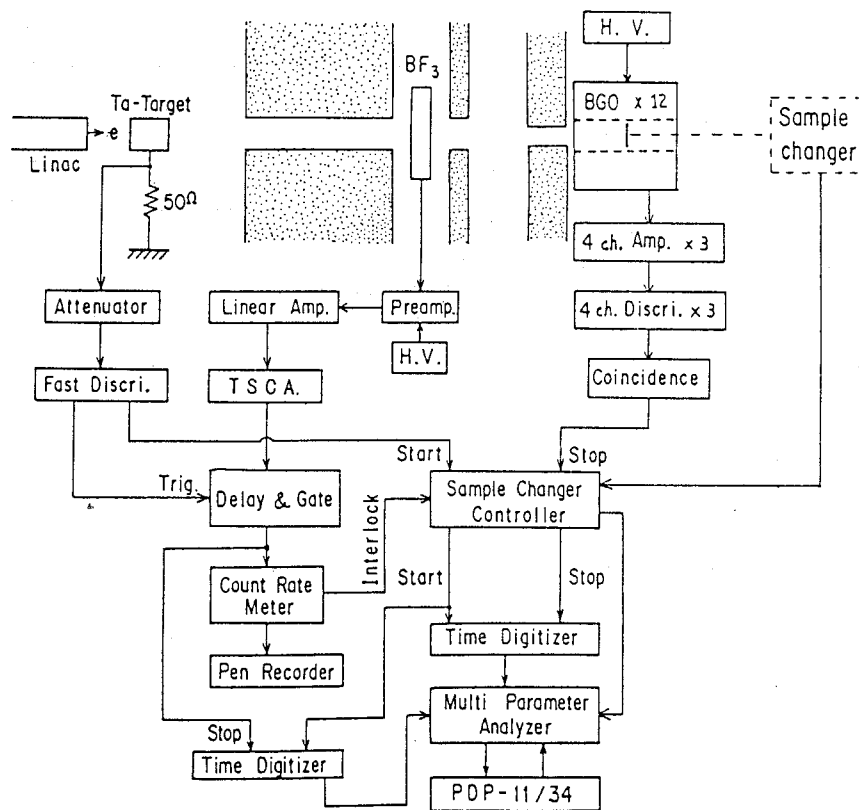


Fig. 3-3. Block diagram of the data acquisition system.

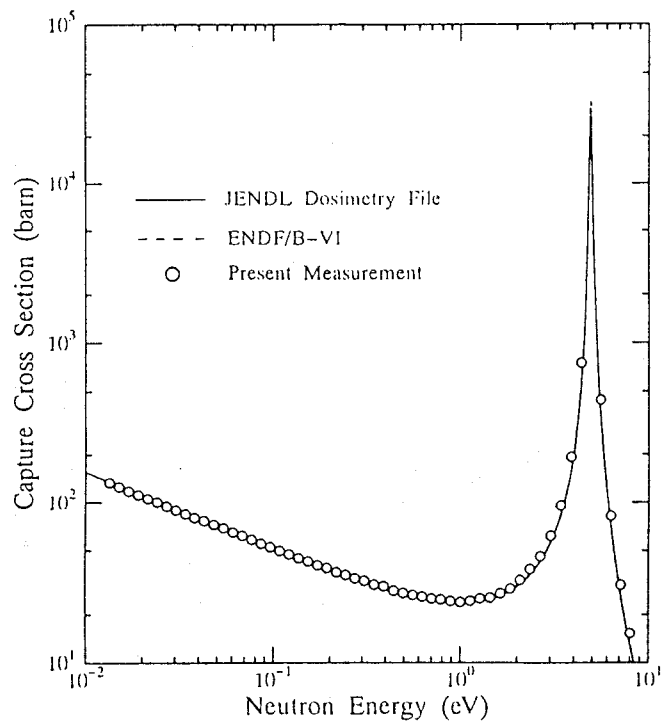


Fig. 3-4. Capture cross section for the $^{197}\text{Au}(n, \gamma)$ reaction.

Table 3-1. Comparison of mean value of the $^{197}\text{Au}(n, \gamma)$ cross section from the present work with those from ENDF/B-VI and JENDL Dosimetry File.

Energy range (eV)	ENDF/B-VI (barn)	JENDL-DF (barn)	Present (barn)
0.0134-0.0213	119.7	117.7	117.7 ± 2.9
0.0213-0.0338	95.4	95.8	94.1 ± 2.3
0.0338-0.0538	76.1	76.2	75.7 ± 1.8
0.0538-0.0855	60.9	61.0	61.2 ± 1.5
0.0855-0.136	49.1	49.2	49.4 ± 1.2
0.136-0.217	39.9	39.9	40.3 ± 1.0
0.217-0.347	32.9	32.8	33.4 ± 0.8
0.347-0.554	27.9	27.7	28.3 ± 0.7
0.554-0.886	24.8	24.5	25.3 ± 0.7
0.886-1.438	24.1	23.6	24.7 ± 0.6

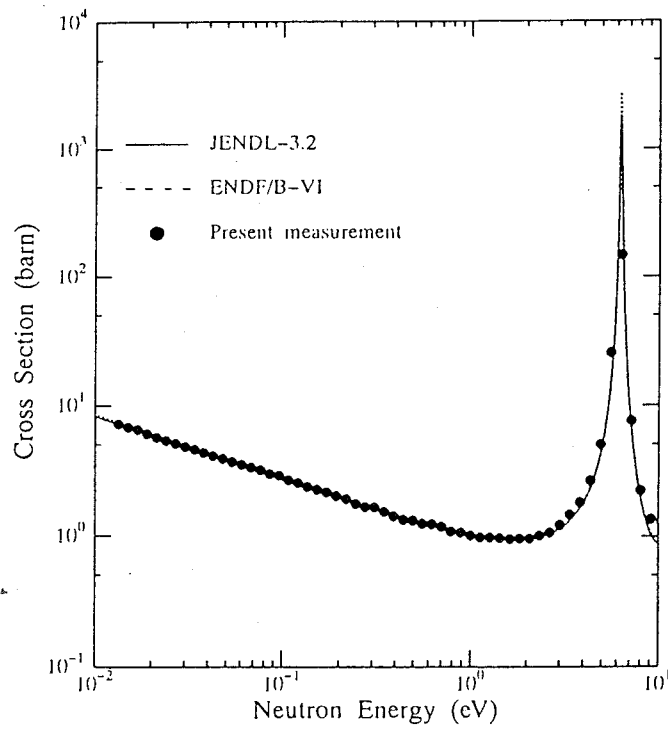


Fig. 3-5. Capture cross section for the $\text{Sb}(n, \gamma)$ reaction.

Table 3-2. Comparison of mean value of the $\text{Sb}(n, \gamma)$ cross section from the present work with those from ENDF/B-VI and JENDL-3.2.

Energy range (eV)	ENDF/B-VI (barn)	JENDL-3.2 (barn)	Present (barn)
0.0134 - 0.0213	6.62	6.35	6.31 ± 0.18
0.0213 - 0.0338	5.26	5.05	5.00 ± 0.13
0.0338 - 0.0538	4.18	4.01	4.05 ± 0.10
0.0538 - 0.0855	3.33	3.20	3.30 ± 0.08
0.0855 - 0.136	2.66	2.55	2.64 ± 0.07
0.136 - 0.217	2.13	2.04	2.10 ± 0.06
0.217 - 0.347	1.71	1.65	1.67 ± 0.05
0.347 - 0.554	1.40	1.35	1.34 ± 0.05
0.554 - 0.886	1.17	1.13	1.14 ± 0.04
0.886 - 1.438	1.01	0.98	0.98 ± 0.03
1.438 - 2.344	0.96	0.94	0.95 ± 0.03

第4章 BGO検出器を用いた中性子透過率精密測定のための中性子共鳴捕獲検出器の開発と利用に関する研究

第4章 BGO検出器を用いた中性子透過率精密測定のための中性子 共鳴捕獲検出器の開発と利用に関する研究⁽¹⁾

第1節 緒 言

中性子断面積の精密測定法の1つに中性子フィルタービームを用いる方法がある。この測定法の特徴は中性子エネルギーとしては定点測定であるが、高精度の測定データが得られる方法として注目される^{2~5)}。中性子フィルター法の原理は、複合核弾性散乱とポテンシャル散乱の干渉によって共鳴エネルギーの近傍で全断面積の値が鋭く凹形状に小さくなる物質があり、このエネルギーに対応する中性子の透過率は周囲のエネルギー領域のものより格段と高くなる性質を応用したものである。即ち、断面積極小値をもつ物質で作られた厚い材料を原子炉や加速器から得られる連続エネルギースペクトルをもった中性子ビーム中に挿入すると、その極小値エネルギーに対応する中性子以外は大部分が遮蔽されるため、信号／雑音比のよい準単色ピーク形状の透過中性子スペクトルが得られる。また、加速器によるパルス中性子源を用いた飛行時間分析法と組み合わせるとバックグラウンドの量が精度よく評価できるなど、中性子フィルター法は中性子断面積の精密測定において非常に都合の良い方法といえる。しかし、このような目的に利用できるフィルターの種類、測定に使えるエネルギー点には限りがあつて、現在までに利用されている主なフィルター物質とエネルギー点は酸素（液体）の 2350 keV、シリコンの 144 keV 及び 54 keV、鉄の 24 keV、スカンジウム の 2.0 keV、ウランの 0.186 keVなどと、それらの大部分はkeVからMeVの高エネルギー領域に集中している。

本研究では、この高い信号／雑音比をもつ準単色のフィルタービーム法と類似し、しかもフィルタービーム法が適用できない多くのエネルギー点において中性子透過率を飛行時間分析法によって精密に測定する方法を開発した。本測定法は

捕獲断面積に大きな共鳴をもつ試料と $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ (BGO) シンチレータを組み合わせた検出器系から成る中性子共鳴捕獲検出器の応用によって実現できた。本検出器を中性子飛行時間分析法による中性子透過率測定に使用した場合、計測された時間スペクトルの形状はフィルター中性子の場合に似て、(1) 捕獲試料の各共鳴に相当するエネルギー一点に高い計数ピークを示す。従って、共鳴領域において高い信号／雑音比での測定が期待できる。(2) 捕獲試料の種類を換えることで容易に測定エネルギー点をかえることができる。(3) 捕獲試料と同じ材料で中性子ビームを遮蔽することによりバックグラウンドを精度よく決めることができる(Self-Indication 法)。(4) BGO検出器系に同時計数が適用できるため信号／雑音比の向上が期待できる。

本章では、まず中性子捕獲試料としてタンタルを使用したBGO検出器系と電子線形加速器(ライナック)を用いた飛行時間分析法(TOF法)により、タンタル(Ta)の共鳴エネルギー 4.28, 10.4, 14.0, 23.9, 35.9 及び 39.1 eV の6点における中性子透過率の測定から、これらのエネルギー点における全断面積を求めた結果を示す。この場合、標準断面積としてよく知られている水素と炭素から成るポリエチレンに対する全断面積測定を行い、この共鳴捕獲検出器がライナック飛行時間分析法による中性子透過率の精密測定用検出器として有用であることを検証する。次に、この検出器を用いて、中性子の電気分極率評価/6, 7/にとって有用な基礎的データを提供するものとして関心が寄せられている天然鉛に対する中性子全断面積を精密測定した結果について述べる。

第2節 中性子共鳴捕獲検出器

2-1 検出器の構造

BGOシンチレータは、比重が 7.13 と大きく高エネルギーガンマ線に対しても高い検出効率を持つことに着目して、これを用いた全エネルギー吸収型検出器を開発し、その特性を明らかにするとともに本検出器を中性子捕獲断面積の絶対測定に応用した。このことについてはすでに第2章及び第3章において述べたと

おりである/8~10/。本章で使用する中性子共鳴捕獲検出器とは、このBGOシンチレータを用いた全エネルギー吸収型検出器と中性子共鳴捕獲試料を組み合わせた検出器であり、TOF実験に用いると、その共鳴捕獲試料の共鳴エネルギー点では非共鳴エネルギー領域に比べ極めて高い計数率を示す鋭いピーク状のスペクトルが観測される。本研究では、中性子フィルター法で得られるビーム特性とよく似たスペクトル形状が得られることを利用して、中性子捕獲試料の共鳴エネルギー点における透過率の精密測定を行い、全断面積測定に適用する。本検出器は、Fig. 4-1に示すように、8個のBGO検出器をアセンブリとして組み合わせ、これには断面 $2.7 \times 2.7 \text{ cm}^2$ の中性子ビーム入射用貫通孔が設けられている。その中央部に中性子測定用の捕獲試料をセットした検出器で、第3章 2-2項の場合と同様な構造である。

2-2 中性子共鳴捕獲試料

タンタルは、Fig. 4-2 に示すように、 $4.28 \cdots \cdots 39.1 \text{ eV}$ 等に多くの共鳴ピークを有している。これらの共鳴中性子エネルギー点は、適切なエネルギー間隔にあると共に、共鳴エネルギーでは高い検出感度が期待できるので、タンタルを本実験の共鳴捕獲試料として取り上げた。本実験で用いるタンタル試料は、 $1.8 \times 1.8 \text{ cm}^2$ 、厚さ 1.0 mm の金属板状で、中性子ビームがこれに垂直に入射するようにBGO検出器の貫通孔中心にセットした。

第3節 実験方法

3-1 全断面積測定用試料

共鳴中性子エネルギーのような低エネルギー領域では水素や炭素の全断面積は非常に高い精度で得られているので、これらの元素から成るポリエチレンを中性子全断面積測定の標準試料として選んだ。各試料とその厚さを、Table 4-1 に示す。ポリエチレン試料は $7 \times 7 \text{ cm}^2$ 、厚さ 0.5 cm の板材から2種類、鉛試料は $7 \times 7 \text{ cm}^2$ 、厚さ 1.0 cm の板材から3種類の厚さを用意した。ポリエチレン試料は

市販のもので不純物の少ないものを用いた。鉛試料の純度は99.9993 %で、主な不純物としては、Bi が 6ppm、Sb が 1ppm含まれている。

3-2 パルス状中性子源

中性子の透過率測定は、京都大学原子炉実験所に付設されている46 MeVの電子線形加速器（ライナック）を用いたTOF法によって行った。使用した光中性子発生用タンタルターゲット及びその周辺の配置はFig. 4-3に示すように、基本的には第3章、2-4項の場合と同様である。

飛行時間分析実験におけるライナックの運転条件は、加速電子のパルス幅：68 ns、パルスの繰り返し数：300 Hz、ピーク電流値：約2 A、電子の加速エネルギー：約32 MeVであった。本実験では、前のバーストで発生した熱中性子の混入を避けるため、厚さ0.5 mmのカドミウム板で中性子飛行管の入り口部を覆っている。

3-3 実験配置

中性子透過率測定の実験配置は、Fig. 4-3に示すように、第3章、2-3項とほぼ同様である。本実験で使用した飛行管は、ライナックの電子ビームに対して135度方向にあり、中性子検出器はタンタルターゲットより 12.7 ± 0.01 mの位置にセットした。中性子線およびガンマ線の遮蔽、並びにコリメーション系には、主として、 B_4C 、 Li_2CO_3 、Pb を使用し、飛行管入口部での直径が12 cmであるのに対し、BGO検出器前では直径が1.5 cmとなるよう順次変化させた配置で中性子ビームを絞り検出器の貫通孔に導いた。透過率測定用試料（ポリエチレン、鉛）を取り付けた回転サンプルチェンジャーは、タンタルターゲットのパルス状中性子源より約10 mの位置にセットした。

また、実験中の中性子ビームの強度変化をモニターするために、飛行路の途中にBF₃比例計数管をセットした。これにより、透過率測定における試料への入射中性子束の強度変化をモニターし、データ処理の際に測定データ間の規格化に用いた。

3-4 測定回路系

測定系のブロック図をFig. 4-4に示す。8台のBGO検出器を左右4台ずつの2グループに分け、これら2グループからの信号に対する同時計数をとることにより信号／雑音比の改善を計った。同時計数回路からの出力はサンプルチェンジャー制御装置を通して時間分析器(Time Digitizer)に入る。時間分析器のスタート信号はタンタルターゲットからの電流パルスを使用した。こうして得られた飛行時間データはPDP-11/34計算機に接続したキャンベラ社のシリーズ88マルチパラメータ分析器に収納した。サンプルチェンジャー1回転当たり8～10分の時間をサンプルチェンジャーに取り付けた各試料(4個所)のおよその計数率の逆比に応じて配分セットし、多数回くり返して各試料の中性子透過率測定を行った。時間分析器からのデータはサンプルチェンジャーの試料位置確認信号により、各試料ごとに割り当てられたメモリー領域に収納し、自動連続測定ができるようにした。測定中の中性子ビーム強度の変化をモニターするために、飛行路中にセットしたBF₃比例計数管からの信号もまた飛行時間分析して記録するようにした。

第4節 データ収集・処理

ポリエチレン試料(厚さ0.5 cm、1 cm)とオープンビーム(試料“なし”)または鉛試料(厚さ3 cm、4 cm、5 cm)とオープンビームに対するフォアグラウンドとバックグラウンド測定のセットを数回(一回約15時間測定)行った。オープンビームに対するTOFスペクトル(フォアグラウンド及びバックグラウンド)の代表例をFig. 4-5に示す。バックグラウンドの測定は、共鳴捕獲試料と同じ材料のタンタル板を中性子ビーム中に挿入する手法(Self-Indication 法)を用いて行った/11～12/。

データ処理のため計算プログラムを用意した。まず、TOFデータの計数率に対して数え落としの補正を行った後、同じ試料厚さ毎のデータをモニターカウンタで規格化して足し合わせ1つのデータとした。フォアグラウンドの計数値はピーク領域の半値幅(FWHM)に相当するチャンネルから、また、バックグラウンドの値は時間スペクトルに見られる飽和領域の計数値を用いた。従って、雑音／信号比

はこれらのチャンネル当たりの計数値の比をとることにより得ることができる。
例えば、オープンビームの場合の各共鳴エネルギー（4.28～39.1 eV）における
雑音／信号比は0.0058～0.0080であった。

i 番目の共鳴領域に相当する中性子の全断面積 σ_{Ti} は次式で与えられる。

$$\sigma_{Ti} = \frac{1}{Nt} \ln T_i$$

ただし、

$$T_i = \frac{(I_i - IB_i)/M}{(O_i - OB_i)/MB}$$

ここで、

N : 測定試料の原子密度 (個/cm³)、

t : 測定試料の厚さ (cm)、

I_i : 試料 “あり” の場合の i 番目の共鳴領域におけるフォアグラウンドの
計数値、

O_i : 試料 “なし” の場合の i 番目の共鳴領域におけるフォアグラウンドの
計数値、

IB_i : 試料 “あり” の場合の i 番目の共鳴領域におけるバックグラウンドの
計数値、

OB_i : 試料 “なし” の場合の i 番目の共鳴領域におけるバックグラウンドの
計数値、

M : フォアグラウンド測定中のBF₃モニターの計数値、

MB : バックグラウンド測定中のBF₃モニターの計数値。

第5節 結果及び検討

本実験では、中性子共鳴捕獲検出器を用いて、まず、標準断面積である水素と炭素からできているポリエチレン試料の透過率測定を行った。タンタルの共鳴エネルギー4.28、10.4、14.0、23.9、35.9及び39.1eVにおける全断面積の測定結果をFig. 4-6に示す。実験誤差には主として計数の統計、試料の厚さを考慮してお

り、それぞれの自乗和の平方根から0.4~0.8 %となった。同図に示した評価済データENDF/B-IVの値/13/は、本実験値と非常によく一致していることが分かる。このことから、測定に使用した共鳴捕獲検出器は、中性子飛行時間測定用検出器として全断面積の精密測定に適用できることが検証できた。

次に、本検出器を鉛の中性子全断面積測定に応用した。2~3時間の測定を18回繰り返したが、それぞれの結果をFig. 4-7に示す。各々のエネルギー点における測定データの実験誤差は約1%であった。18個のデータをまとめた最終的な結果をTable 4-2 及び ENDF/B-V の評価値や従来の実験値/14/と比較してFig. 4-8に示す。Table 4-2には、オープンビーム(試料なし)の各共鳴ピークに対する半値幅(FWHM)及び雑音/信号比も示した。主な測定誤差は、透過率測定における計数の統計と試料の厚さによるもので、Fig. 4-8に見られるデータの標準偏差値は0.2~0.5 %であった。今回得られた6つの測定点における結果にはよい再現性が見られ、これらのエネルギー領域における全断面積値の信頼性を示すものである。

標準断面積であるポリエチレンの全断面積測定に用いた共鳴捕獲検出器の応用として、eV領域における鉛の全断面積測定を行った。その結果は、Fig. 4-8から分かるように、ENDF/B-V /15/の評価値及び Waschkowski/16/やAdamchuk/17/らの実験値は、我々の測定データとよい一致を示している。本実験のエネルギー領域では、旧来より他にいくつかの実験値も得られている。これらのデータは古いものであるが本実験値に近い値を示している。

第6節 結 言

中性子断面積の精密測定法として優れた信号/雑音比をもつフィルタービーム法に類似した方法として、8個のBGOシンチレータと共鳴捕獲試料タンタルを組み合わせた中性子共鳴捕獲検出器を開発し、ライナックTOF法による中性子全断面積測定に応用した。本研究で得られた結果をまとめると、

- (1) 本検出器を用いた中性子飛行時間スペクトル測定では、タンタルの共鳴エネルギー点、4.28、10.4、14.0、23.9、35.9 及び 39.1eV において信号/

雑音比のよい、高い計数ピークが得られた。

(2) ライナック T O F 法による中性子透過率測定用検出器として、本共鳴捕獲検出器の有効性を調べるため、標準断面積の 1 つとしてよく知られているポリエチレンの中性子全断面積測定に応用した。測定結果は、ENDF/B-IV の評価済データをよく再現し、中性子全断面積の精密測定用中性子検出器として十分有用であることを確認した。

(3) 本検出器の応用として、鉛の中性子全断面積測定を行った結果、4.28 eV から 39.1 eV 領域のデータ値は何れも 11.17~11.18 b を示し、測定誤差は 0.2~0.5 % の範囲内におさまる高精度の実験を達成することができた。ENDF/B-V のデータその他、Waschkowski や Adamchuk の実験値も今回の測定結果とよい一致を示している。

本研究では、タンタルを中性子共鳴捕獲試料として使用したが、他の共鳴捕獲試料と取り替えることにより、さらに多くのエネルギー点において全断面積測定が可能であり、T O F 法による中性子透過率の精密測定用検出器として今後の応用が期待できる。

[参考文献]

- /1/ K. Kobayashi, S. Yamamoto and Y. Fujita : Nucl. Instrum. Meth, **A287**, 570 (1990).
- /2/ R.C. Block, et al. : J. Nucl. Sci. Technol., **12**, 1 (1975).
- /3/ K. Kobayashi. et al. : J. Nucl. Sci. Technol., **18**, 823 (1975).
- /4/ S.Cierjacks,(Ed.) : "*Neutron Sources for Basic Physics and Applications*", "*Neutron Physics and Nuclear Data in Science and Technology*", OECD/NEA, Pergamon Press, Vol. 2 (1983).
- /5/ 藤田薫顕、山室信弘 : 日本原子力学会誌、**23**, 85 (1981)
- /6/ R.E. Wood : Phys. Rev., 104, 1425 (1956).
- /7/ L. Koester, W. Waschkowski and A. Kluver : Physica B, **137**, 282 (1986).
- /8/ S. Yamamoto, Y. Fujita, T. Shibata and S. Selvi : Nucl. Instrum. Meth., **A249**, 484 (1986).
- /9/ S. Yamamoto, K. Kobayashi and Y. Fujita : Proc. Int. Conf. on Nucl. Data for Sci. Technol., Mito, JAERI, p.375 (1988).
- /10/ S. Yamamoto, K. Kobayashi and Y. Fujita : J. Nucl. Sci. Technol., **33**, 815 (1996).
- /11/ R.C. Block, et al. : Nucl. Sci. Eng., **80**, 263 (1982).
- /12/ Y. Fujita, et al. : Proc. Int. Conf. on Neutron Physics, Kiev, Sep. 1987, Vol. 2, p.195 (1988).
- /13/ ENDF/B Summary Documentation, BNL-NCS-17541(ENDF-201), 2nd ed., compiled by D. Garber, available from the Nuclear Data Center, BNL, Upton, New York (1975).
- /14/ V. McLane, et al., : "*Neutron Cross Sections*", Vol. 2, Academic Press Inc., New York (1988).
- /15/ The data were cited from ref. /14/
- /16/ W. Waschkowski, et al., : Z. Naturforsch, **A31**, 115 (1976).
- /17/ Yu.V. Adamchuk, et al., Proc. Int. Conf. on Neutron Physics, Kiev, 1971, Vol. 1, 124 (1972).

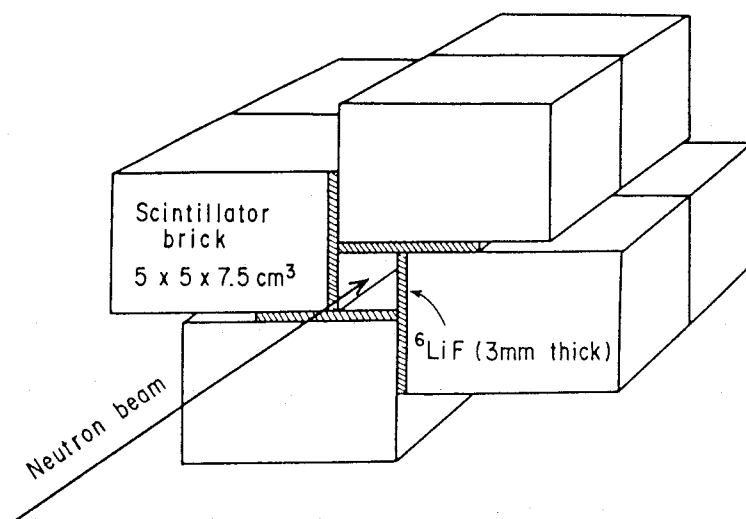


Fig. 4-1. Assembly of BGO scintillators.

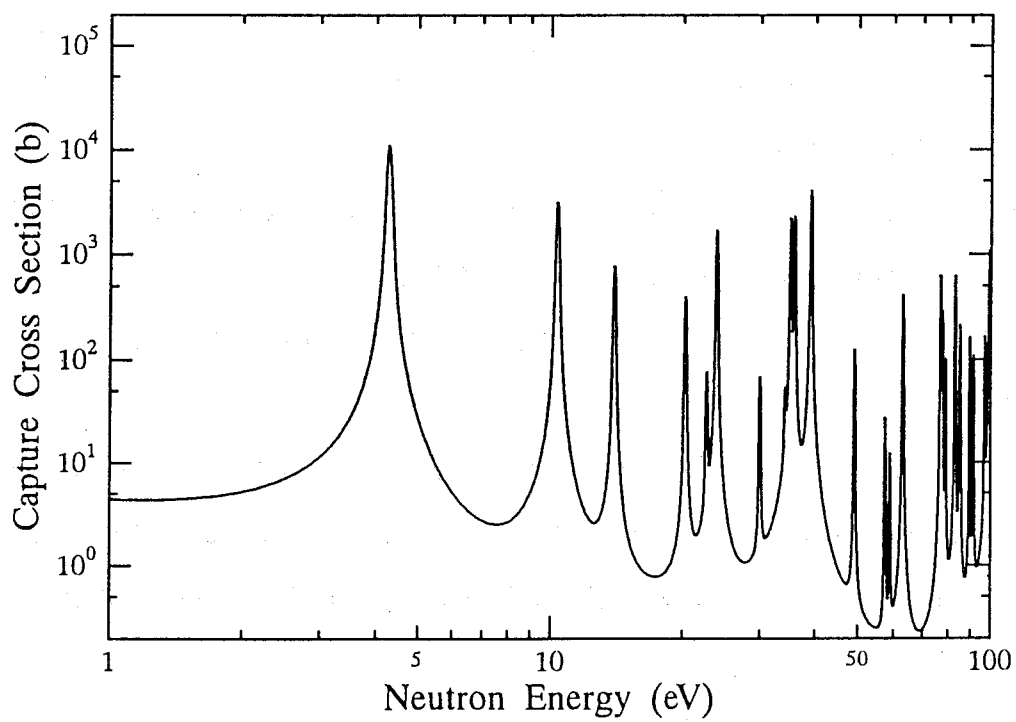


Fig. 4-2. ${}^{181}\text{Ta}(n, \gamma)$ reaction cross section from JENDL-3.2.

Table 4-1. Transmission samples

Sample	Thickness	
	[cm]	[atom/b]
Lead	3	0.09858 ± 0.00020
	4	0.13152 ± 0.00026
	5	0.16478 ± 0.00032
Polyethylene	0.5	0.02086 ± 0.00004
	1	0.04080 ± 0.00008

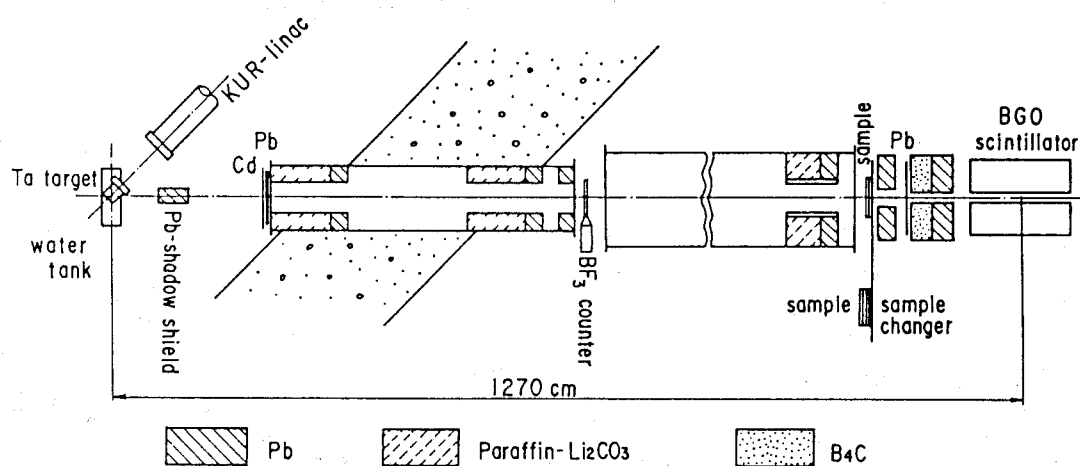


Fig. 4-3. Experimental arrangement for the transmission measurement.

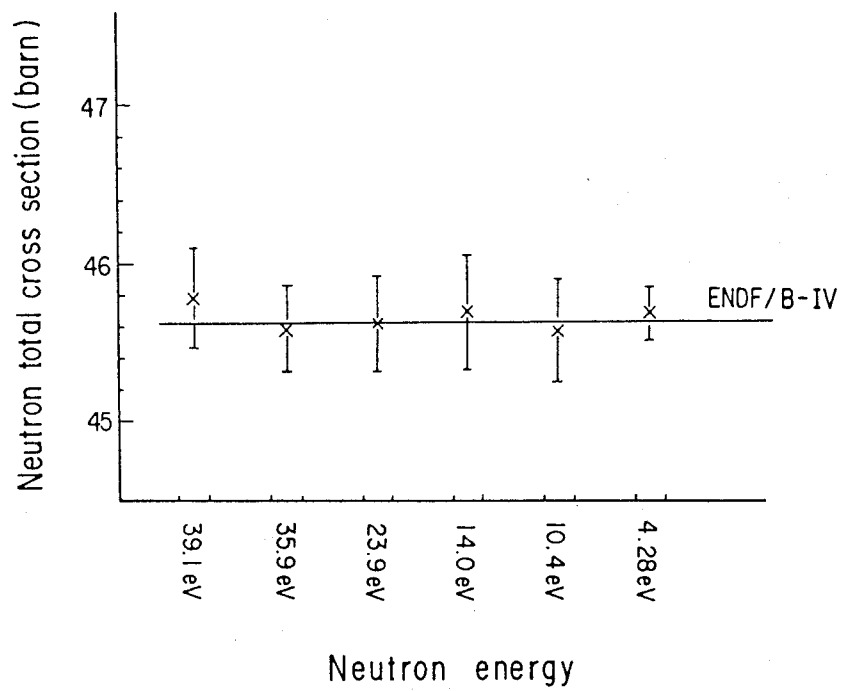


Fig. 4-6. Neutron total cross section of polyethylene.

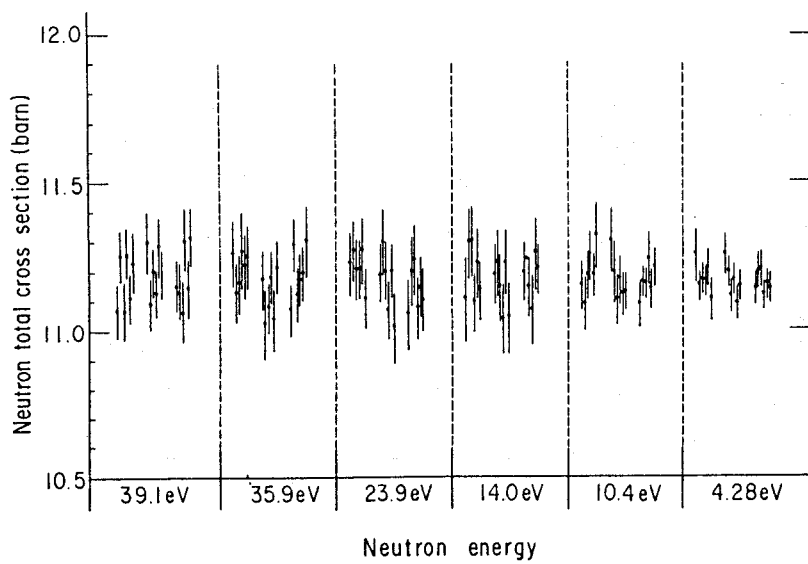


Fig. 4-7. Measured results of 18 runs for the neutron total cross section of lead.

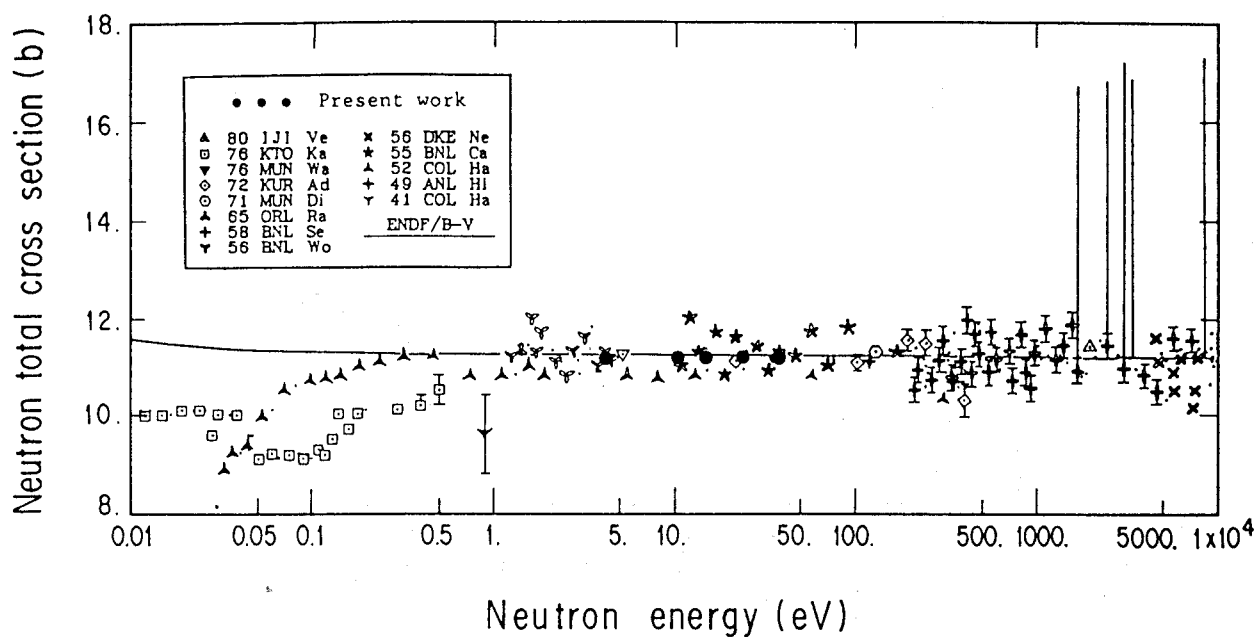


Fig. 4-8. Neutron total cross section of lead.

Table 4-2. Neutron total cross section of lead

Resonance energy [eV]	FWHM [eV]	Noise/Signal ratio [open beam]	Total cross section [b]
4.28	0.30	0.0058	11.17 ± 0.025
10.4	0.34	0.0055	11.18 ± 0.036
14.0	0.26	0.0070	11.18 ± 0.051
23.9	0.54	0.0074	11.17 ± 0.040
35.9	1.17	0.0066	11.18 ± 0.037
39.1	1.11	0.0080	11.18 ± 0.045

第5章 中性子共鳴捕獲検出器を応用した中性子 全断面積の精密測定

第5章 中性子共鳴捕獲検出器を応用した中性子全断面積の精密測定⁽¹⁾

第1節 緒 言

中性子と物質の相互作用に関連して、種々の中性子反応断面積が存在している。中でも中性子全断面積は部分断面積の総和として極めて重要なものである。電子線形加速器（ライナック）等を用いたパルス状中性子源の開発、発達とともに/2/、エネルギーに依存した中性子透過率の測定が比較的容易に行えるようになり、極めて多くの試料、元素について全断面積測定が行われてきた/3/。中性子全断面積の測定原理そのものは、中性子ビーム中に試料を置いた場合と置かない場合の単純な実験配置となるが、実験に伴うバックグラウンドの評価が測定値の「良し悪し」を大きく左右するので、実験上の最大関心事は適切な実験配置の下にバックグラウンドを低減させ、信号/雑音 比を良くして実験を行うことである。このような条件を得る目的で、いろいろ工夫をこらした実験手法が検討されてきた。鉄やシリコンによるフィルター中性子ビームを用いた実験/4/、先の第4章で述べた新たな共鳴捕獲検出器による測定法/5/などは、中性子全断面積の精密測定法として注目できる。

今日、殆どの試料、元素に関する中性子全断面積は、熱中性子から高速中性子に及ぶ広いエネルギー領域にわたり、実験データは一応整っているものの、ある種の試料、元素については、これを応用する研究目的や実用の面から、必ずしも十分な精度のデータが得られているとはいえないものもあり、さらに精度の高いデータが要請されているものもある。

アンチモンは ^{121}Sb (57.3%) と ^{123}Sb (42.7%) の2種類の安定同位元素をも

ち、光中性子源用材料の 1 つとしてしばしば使用される物質である。 $^{123}\text{Sb}(n, \gamma)$ 反応で生成される ^{124}Sb は、ガンマ線放出体としてベリリウムターゲットと組み合わせることにより 23 keV の準単色光中性子を作り出すことができる /6/。アンチモン・ベリリウム光中性子源は、中性子断面積 /7/ や中性子年令 /8/ の測定、中性子コンピュータトモグラフィー /9/ の他、高速炉の起動用中性子源 /10~11/ として利用されている。中性子源の製造あるいは使用において、アンチモンの核データは重要であり、文献 /12/ にもアンチモン関連の核データに対する要求が見られる。アンチモンの全断面積は keV~MeV のエネルギー領域において測定値間に著しい違いがあり、実験データのほとんどは、比較的古いものが多い。これらのデータに対して、Mughabghab は評価曲線を与えている /13/。最近では、Koester 等がロジウムと銀を用いた共鳴放射化法により 1.26 eV 及び 5.19 eV における全断面積を測定している /14/。また、Granada は低エネルギー領域におけるアンチモンの全断面積を計算し /15/、Koester 等の結果とよい一致を得ている。Granada は、彼の計算結果と Mughabghab の評価曲線が 0.035 eV 付近で交叉し、これより高エネルギー側では評価曲線の値が計算結果より小さいことを指摘している。

また、濃縮鉛-208 や天然鉛に対する中性子全断面積については、近年、中性子の電気分極率を評価することを目的として、これらの中性子全断面積の精密測定に関心が寄せられている /16~18/。中性子の電気分極率 α_n は、これら重元素における中性子全断面積の精密測定データから、Schwinger 散乱、中性子-電子散乱、中性子共鳴散乱などの寄与を補正することにより求めることができると言われている /16~20/。濃縮鉛-208 については、特に、他の核種に比べ、第一共鳴レベルが 43.3 keV と高いエネルギーに位置するため、上記の補正に対して有利となる。さらに、鉛は中性子捕獲断面積が比較的小さいこともあって、 α_n 値の評価にとって有利であることから、その中性子全断面積に対する関心が高いもの

となっている。

以上のような観点から、最近では改めて、濃縮鉛-208や天然鉛、ビスマスに対する中性子全断面積の精密測定に深い関心が持たれるようになり、いくつかの実験が実施されている/16～18/。Alexandrov等は、ロシアのGNEIS実験装置を用いた飛行時間分析法により、1eV～10keV領域における濃縮鉛-208及びビスマスの中性子全断面積を測定した/16/。米国では、Schmiedmayer等が ORELA を用いた飛行時間分析法により、50eV～40keV領域の濃縮鉛-208の中性子透過率測定を行っている/17/。また、Granada等は、京都大学原子炉実験所のグループと共同して、46MeV電子線形加速器（ライナック）を用いた飛行時間分析法により1eV～900eV領域の天然鉛に対する中性子全断面積測定を実施した/18/。これら最近の実験データから導出された電気分極率 α_n は $1.2 \sim 2.6 \times 10^{-3} \text{ fm}^3$ の値を示し、旧来の実験データも含めると α_n の解析値は広い範囲（ $0.8 \sim 5 \times 10^{-3} \text{ fm}^3$ ）に分散している。鉛に対する中性子全断面積測定結果の差異がこのような α_n 値の違いを与えていると言える。

濃縮鉛-208、天然鉛に対する最近の評価済データについても違いが見られる。例えば、代表的な核データファイルであるJENDL-3/21/とENDF/B-VI/22/における濃縮鉛-208、天然鉛の全断面積を見ると、本測定での対象エネルギー領域である数eV～数keVにおいて2%程度の違いが見られる。

そこで本研究では、実験データとして現状では未だ問題が見受けられるアンチモンと、高い精度が要求されている濃縮鉛-208、天然鉛に関する中性子全断面積を京都大学原子炉実験所の電子線形加速器（ライナック）を用いて測定した。まず、アンチモンの中性子透過率測定は、比較的高い信号／雑音比が得られ、バックグラウンドレベルの評価にも高い信頼度を与える共鳴捕獲検出器に、（１）インジウムと金の中性子共鳴捕獲試料を用いた場合と（２）これらの共鳴試料に換えてボロン-10試

料を用いた連続エネルギー中性子に対する測定、の2種類の方法により行った。また、5keV～3MeVの高エネルギー領域では、分離共鳴ピークが観測されなくなるので、共鳴捕獲検出器に代わって⁶Liガラスシンチレータを用いた22m飛行路によるアンチモンの中性子全断面積測定を行った。

濃縮鉛-208と天然鉛試料に対する中性子全断面積も共鳴捕獲検出器を用いて測定した。中性子共鳴捕獲検出器では、(1) 4 eV～180 eV領域で大きな共鳴をもつタンタルとアンチモン、及び、(2) ボロン-10試料を用いた連続エネルギー中性子に対する測定、及び(3) (2)の測定系に対して鉄フィルターによる24 keV、シリコンフィルターによる144 keV及び54 keVのフィルター中性子ビーム/23/を用いて、濃縮鉛-208と天然鉛の中性子全断面積測定を行った。

本研究によって得られた結果を、従来の測定値や評価済核データ値と比較し、これら評価済データに対する実験的評価を行う。

第2節 実験方法

2-1 透過率測定用試料

アンチモンの中性子透過率測定用試料は、厚さ 0.5 mm のアルミニウム窓付きで長さがそれぞれ 3、5、10 cm の3種類のアクリル製円筒に粒径 1～2mmのアンチモン粉末を充填したものを用意し、これを回転式のサンプルチェンジャーに取り付けた。これら試料の厚さをTable 5-1に示す。アンチモン試料の純度は99.9%以上で、主な不純物として鉛と砒素がそれぞれ0.1%含まれている。アンチモン粉末の酸化による不純物の酸素と水素はそれぞれ0.0269%と0.00003%であった*。

*大阪市西区土佐堀、中国環境分析センターによる。

中性子透過率測定用の鉛試料には、板状の天然鉛の他に、同位体の存在率が52.4 %の鉛-208を97.65 %まで濃縮した金属板状の鉛-208試料(Pb-207:1.48%、Pb-206:0.87%、その他の不純物:0.003%)を用意した。鉛-208試料は、直径25.25mm、厚さ11.0mm及び15.0mm、直径50.0mm、厚さ10.5mmのものを重ね合わせて使用した。また、天然鉛試料は断面が3 x 3cm²、厚さ1cmの板状鉛(純度:99.9993%)を4枚用意し、これらを重ね合わせたものである。これらの試料の厚さについてもTable 5-1にまとめて示した。試料厚さは、全断面積値 σ 、原子密度 N 、厚さ t の関係が $N\sigma t \div 1$ 前後になるように選定した。

2-2 実験配置

中性子の透過率測定は、京都大学原子炉実験所に付設されている46MeV電子線形加速器(ライナック)を用いた飛行時間分析(TOF)法によって行った。本飛行時間分析実験に使用した中性子飛行路、検出器の種類など測定に関連した実験パラメータ及びその条件をまとめてTable 5-2に示す。中性子共鳴捕獲検出器を用いた場合の実験配置をFig. 5-1に示す。パルス状中性子発生用のタンタルターゲット、中性子減速用の水タンク、ガンマフラッシュ低減用の鉛シャドウシールド等の実験配置は第4章で示したものとほぼ同様である。高エネルギー領域における測定では共鳴捕獲検出器に代えて⁶Liガラスシンチレータを用いた実験を行うこととした。⁶Liガラスシンチレータは、熱中性子から高速中性子領域におけるTOF実験用検出器としてしばしば利用されているものであり/24~25/、Fig. 5-2に本実験における実験配置を示した。飛行路は22mで、中性子コリメータは主としてB₄C、H₃BO₃、鉛で構成されている。透過率測定用試料は中性子飛行路のほぼ中間にセットされ、コリメータの口径はこの透過率測定用試料の前後で4cm、ターゲット室の飛行管入口及び中性子検出器前の飛行管出口の両端でほぼ10cmとなるようにテーパ状に順

次大きくなる配置がとられている。TOF測定中の中性子ビーム強度及び実験と実験の間の中性子源強度の相対変化をモニターするために、中性子飛行路のビーム中にBF₃比例計数管を挿入して用いた。

2-3 中性子検出器

実験に使用した中性子共鳴捕獲検出器の構造、特性についてはすでに第4章で述べたとおりである。本研究では、共鳴捕獲検出器を用いた飛行時間分析実験の他に、比較のため連続エネルギースペクトルをもつ中性子に対する透過率測定も実施した。この場合の中性子検出器としては、共鳴捕獲試料に換えて、ボロン-10粉末を厚さ0.2mmのアルミニウム製容器に充填した試料(断面: $1.8 \times 1.8 \text{ cm}^2$ 、厚さ: 1.10 g/cm^2)を使用した。本実験において使用した中性子共鳴捕獲試料と、測定対象としたエネルギー領域をTable 5-2にまとめて示した。

高エネルギー領域における中性子全断面積測定には、中性子共鳴捕獲検出器に換えて、⁶Liガラスシンチレーション検出器を使用した。本検出器は直径12.7cm、厚さ1.27cmの⁶LiガラスシンチレータをEMI-9618/R光電子増倍管に取り付けたものであり、本検出器に関する諸特性の詳細については文献/24~25/に詳しく述べられている。

第3節 測定と解析

3-1 測定方法

本研究において実施した実験の諸条件、エネルギー範囲、用いた中性子検出器等をTable 5-2にまとめて示した。

アンチモンの低エネルギー領域における全断面積測定では、まず、大きな中性子共鳴を持つ金、インジウムを使った共鳴捕獲検出器を用いてアンチモン試料の中性子透過率測定を実施した。次に、これらの共鳴捕獲試料をボロン-10に変更して、10 eV以下の領域におけるエネルギー依

存断面積を測定した。高エネルギー領域では、非分離共鳴領域となるため共鳴捕獲検出器が使用できないことと飛行時間分析実験における系統的な実験上の不確かさを少なくする目的から、中性子検出器を⁶Liガラスシンチレータ（厚さ12.7mm、直径12.7cm）にかえて22 m飛行路を用いた実験を行った。バックグラウンドの測定は、共鳴捕獲検出器の場合、共鳴捕獲試料と同種の材料を中性子ビーム中に挿入する手法（Self-indication法）を適用した。また、エネルギー依存断面積測定では、飛行路中にIn、Au、Co、Mn等のノッチフィルター及びCd板を挿入し、得られた飛行時間スペクトルに現れた各フィルターによる共鳴ピークに対応した飽和領域のデータを内挿することにより求めた。この場合、バックグラウンド曲線は、関数 $F(I)=aI^b$ （ I は時間分析器のチャンネル番号、 a 、 b は定数）によって共鳴飽和領域間の内挿を行った。Fig. 5-3 は共鳴捕獲検出器によって得られたオープンビーム（透過率試料の無い場合）に対するフォアグラウンドとバックグラウンド測定及びバックグラウンド関数の1例を示している。

天然鉛及び鉛-208 試料の中性子透過率測定では、測定エネルギー点を多くするため、共鳴捕獲試料としてタンタルとアンチモンを使用している（Fig. 5-4 はオープンビームに対する測定の1例で、タンタルとアンチモンの共鳴エネルギー点で高計数率ピークが見られる）。その他についてはアンチモンの透過率測定の場合とほぼ同様な実験手法である。鉛の場合、数10keV領域における測定として、鉄（24keV）及びシリコン（54、144keV）フィルタービームを用いた全断面積測定も実施した。鉄及びシリコンフィルタービームを用いた中性子透過率測定実験では、鉄やシリコンフィルターを中性子飛行管の入口部、飛行管のほぼ中間領域及び飛行管出口部に配置し、全体の厚さは、鉄27cm、シリコン1mとした。鉄およびシリコンによるフィルタービームの飛行時間スペクトルの測定例をFig. 5-5 及び Fig. 5-6に示す。実験中の中性子ビームの強度変化

をモニターするために、飛行管の途中にBF₃カウンターをセットして用いた。BF₃カウンターからの信号もまた飛行時間分析して記録し、関連エネルギー領域の計数の積分値を、データ処理の際に測定データ間の規格化に用いた。

3-2 データの収集・処理

実験に使用した測定系のブロック図を、Fig. 5-7に示す。BGO検出器からの出力は、増幅器、ディスクリミネータを経て同時計数回路に入る。この同時計数回路では、2個以上の同時入力パルスに対して1個の出力パルスを発生するように設計した。中性子捕獲の際に放出される即発ガンマ線の数はいくつにもなるので同時計数法の採用は、捕獲事象の計数において信号／雑音比の改善に役立つ。しかし、ボロン-10試料の場合は、 $^{10}\text{B}(n, \alpha \gamma)$ 反応により放出されるガンマ線は478keV 1本のみであるため、同時計数法は適用できない。 ^6Li ガラスシンチレータを用いた実験の回路系も、同時計数回路の使用以外は共鳴捕獲検出器の場合とほぼ同様である。ターゲットからの電流パルスをタイムディジタイザのスタートパルスとし、同時計数回路の出力パルスをストップパルスとして得られるTOFデータは、PDP-11/34計算機に接続されたCanberra社製88シリーズ、マルチパラメータ分析器に収納した。透過率測定用の試料は、4つの測定位置(#1~#4)を持つ回転サンプルチェンジャーに取り付けた。例えば、鉛実験の場合は #1-試料なし、#2-濃縮鉛-208、#3-試料なし、#4-天然鉛として割り当て、各試料に対するTOFデータ(2048チャンネル x 4系統)はサンプルチェンジャーの位置信号により各々指定された分析器の各領域に収納した。同様に、測定中の各試料へ入射する中性子束の強度変化は飛行路中に挿入したBF₃比例計数管による飛行時間分析データによってモニターし、これらのデータも各試料ごとに指定された領域に収納した。中性子モニターの計数値は、各サンプル位置での

測定データ間の規格化に使用するもので、断面積測定のエネルギー領域に相当するチャンネルのカウントを積分することにより得た。

飛行時間分析実験における中性子エネルギー $E(\text{eV})$ と飛行時間 $t(\mu\text{s})$ の関係は次式で与えられる。

$$E(I) = \left\{ \frac{72.3 \times L}{(I - I_0) \times W} \right\}^2 \quad (1)$$

ここで、 I は時間分析器のチャンネル番号、 I_0 は中性子バーストが発生した時刻 $t=0$ に当たるチャンネル番号、 L は中性子飛行距離 (m)、 W は時間分析器のチャンネル幅 (μs) である。

各チャンネルの TOF データを 0.1 レサジー幅毎に加算して用いることにして、その i 番目のグループに相当するエネルギーを (E_i) とすると、エネルギー依存全断面積 $\sigma(E_i)$ は次式で与えられる。

$$\sigma(E_i) = \frac{1}{N} \ln T(E_i) \quad (2)$$

$$T(E_i) = \frac{\{I(E_i) - IB(E_i)\} / M}{\{O(E_i) - OB(E_i)\} / MB} \quad (3)$$

ここで、 N (個/cm²) は原子密度、 $I(E_i)$ と $O(E_i)$ は試料がビーム中にある場合 "In"、及び無い場合 "Out" のフォアグラウンドを、 $IB(E_i)$ と $OB(E_i)$ は試料 "In" 及び "Out" の場合のバックグラウンドを、 M と MB はそれぞれのモニターカウントを意味している。

第4節 結果及び検討

4-1 アンチモン

(1) 低エネルギー領域におけるアンチモンの全断面積測定の結果を Fig. 5-8 及び Fig. 5-9に示す。本測定は、BGOシンチレータからなる全エネルギー吸収型検出器にボロン-10試料を組み合わせた検出器によるもので、測定の統計誤差は、5eV、0.5eV、0.05eV のエネルギー付近で、各々約 0.6%、0.9%、0.4%であった。その他の誤差として、試料の厚さ測定による誤差が0.09~0.15%、モニタ計数によるデータの規格化に伴う誤差が0.1%程度である。アンチモンの主共鳴(6.24eV)付近における測定値については、主共鳴ピークにおける中性子の自己遮蔽、ドップラー効果、分解能などによる影響が考えられる。このエネルギー領域では、全断面積の解析に(2)式の関係式を適用するだけでは不十分であり、共鳴パラメータによる解析表示が必要となる領域である。

(2) インジウム (1.46eV) 及び金 (4.91eV) を用いた共鳴捕獲検出器による全断面積の測定結果をTable 5-3 に示す。アンチモン試料中の不純物の影響は、低エネルギー領域で測定された全断面積の値に対して0.2~0.4%の補正が必要であった。測定誤差のほとんどは統計誤差に起因しているが、ボロン-10試料を用いた実験値に比べて誤差値が低くなっていることが分かる。ボロン-10プラグを用いて測定したエネルギー依存断面積の測定結果は、共鳴捕獲検出器による1.46及び4.91eVの2つのエネルギー点における測定値とよく一致している。このことは、両測定における系統的な誤差が小さいことを意味している。Fig. 5-8にある古いデータは、本測定で得られた結果より約10%程度、系統的に小さい値を示している。Mughabghabの評価曲線もまた、0.035eV以上で本測定値より5%ほど小さい値を示している。しかしながら、1.26及び5.19eVでのKoester等/14/による測定値はMughabghabの評価値より大きく、本測定値とよく一致している。最近、Granadaは中性子全断面積の計算を

行っており/15/、その計算結果はFig. 5-8に見られるように本測定値に近い値を示している。

次に、(3) 5keV~3MeVの高エネルギー領域におけるアンチモンの全断面積は、共鳴捕獲検出器を ^6Li ガラスシンチレータに換えて測定した。本実験値を従来値と比較してFig. 5-10 及び Fig. 5-11に示す。測定の統計誤差は、2MeV、1MeV、100keV、10keVのエネルギー付近で、各々約1%、0.8%、2%、3%であった。その他の誤差は低エネルギー領域での測定の場合とほぼ同程度である。アンチモン試料中の不純物に対する補正は0.2~0.6%であった。2回の測定結果に対して実験誤差内でデータ間にはよい再現性が得られた。旧来のデータについては、測定値がかなり分散しておりMughabghabの評価曲線はこれらのほぼ平均値を示している。この評価曲線は今回の測定結果に非常に近いものであることが分かる。

4-2 鉛-208、天然鉛

タンタルとアンチモンを用いた中性子共鳴捕獲検出器による測定では、(1) 4eV~180eV領域で、それぞれの共鳴捕獲試料の共鳴に対応するエネルギー点において、濃縮鉛-208と天然鉛の中性子全断面積を測定した。次に、(2) 2eV~2keV領域における鉛の中性子全断面積の測定は、これらの共鳴捕獲試料(タンタル、アンチモン)に換えて、ボロン-10試料を用いることにより行った。さらに、(3) 24keV中性子が得られる鉄フィルタービーム、54keVと144keV中性子が得られるシリコンフィルタービームを用いて、これらの準単色中性子エネルギーに対する中性子全断面積測定を実施した。濃縮鉛-208と天然鉛に対するこれら3つの方法による測定の結果をまとめてFig. 5-12~Fig. 5-16に示す。何れの場合も実験誤差としては、統計誤差、鉛試料の原子数算出誤差、試料厚さに対する空気層の補正及び濃縮鉛-208試料におけるPb-206、Pb-207不純物補正などに伴う誤差を考慮した。4eV~180eV領域の測定誤差は

0.17%~0.65%、2eV~2keV 領域の測定では0.13%~0.66%、鉄フィルター(24keV)では~0.59%、シリコンフィルターでは~0.42%(144keV)、及び~1.3%(54keV)の実験誤差を示した。天然鉛試料の測定に対する実験誤差の場合も濃縮鉛の場合とほぼ同様であった。Fig. 5-12~Fig. 5-16から分かるように、タンタル、アンチモンの共鳴試料を用いた4eV~180eVにおける測定とボロン-10試料を用いた2eV~2keVの連続エネルギー領域に対する測定では、測定領域がオーバーラップするエネルギー領域において、両者の結果は互いによい一致を示している。また、濃縮鉛-208の全断面積は天然鉛より約0.25バーン大きくなっており、いずれの全断面積も2keV付近まではほぼ一定の断面積値を示していることが分かる。

我が国の評価済核データファイルJENDL-3/21/ では、Fig. 5-12に見られるように、天然鉛の場合は本実験値とよく一致しているが、濃縮鉛-208では約2%低くなっている。米国の評価済核データファイルENDF/B-VI/22/では、Fig. 5-13に示したように、濃縮鉛-208 と天然鉛の相対関係はよく似ているものの、濃縮鉛-208、天然鉛共に約0.2バーンほど小さくなっている。keV領域では、両評価核データファイルとも実験値との一致は必ずしもよくないが、どちらかと言えばENDF/B-VIの方がJENDL-3より実験値に近くなっている。

Fig. 5-14 と Fig. 5-16 では、最近の実験データと本測定値を比較しているが、何れも誤差の範囲内で本実験値とよい一致を示していることが分かる。Alexandrov等/16/の濃縮鉛-208に対するデータと本実験値との間には、~1keV付近で僅かな違いが見られるが、全体に誤差の範囲で一致していると言える。Schmiedmayer等/17/が求めた実験値のフィッティング曲線は、シリコンフィルターによる本実験値とも近い値を示している。また、Granada等/18/、及び Koester等/19/が天然鉛に対して求めた値は、今回測定したデータとよく一致している。

第5節 結 言

金、インジウム、タンタル及びアンチモンを共鳴捕獲試料とした中性子共鳴捕獲検出器を用いてライナック飛行時間分析法により、アンチモン、鉛-208及び天然鉛の中性子全断面積測定を行った。また、連続エネルギーによる測定のため共鳴捕獲試料に換えて ^{10}B 試料を用いた場合、と、 ^6Li ガラスシンチレータを用いた測定も行った。これらの測定で得られた結果についてまとめると、

- (1) 低エネルギー領域 (0.01 ~ 10 eV) におけるアンチモンの中性子全断面積の測定では、共鳴捕獲試料として金、インジウムを用いた測定及び ^{10}B 試料を用いた連続エネルギーによる測定を行った。1eV以下の領域では、旧データのほとんどが本実験値に比べて約10 % 程度小さいこと、Mughabghabによる評価曲線もまた0.035 eV以上のエネルギーで5%程度小さいことが明らかとなった。比較的新しいKoester等の測定値と中性子全断面積に関するGranadaの計算は本測定値に近い結果を示している。
- (2) 高エネルギー領域 (5 keV ~ 3 MeV) におけるアンチモンの中性子全断面積に関しては、共鳴捕獲検出器を ^6Li ガラスシンチレータに換えて測定した。旧来のデータについては測定値がかなり分散しているが、ほぼその平均値を示しているMughabghabの評価曲線は本測定結果に非常に近いものである。
- (3) 鉛-208及び天然鉛の中性子全断面積については、タンタル、アンチモンを共鳴捕獲試料とした場合及び ^{10}B 試料を用いた連続エネルギーによる測定を行った。また、鉄フィルター(24keV)及びシリコンフィルター(54、144keV)ビームによる測定も実施した。これらの実験に対し、誤差は 54 keV の測定値(1.3%)を除き、1% 以内の精度で求めることができた。最近の実験値は何れも本実験値と

誤差の範囲内でよい一致を示した。しかし、JENDL-3 及びENDF/B-VI の評価値については、本実験値との間で僅かに差異（1～2%）を示し、今後の修正が望まれる。

- （４）本実験では、BGOシンチレータに中性子共鳴捕獲試料を組み合わせた検出器系と、中性子共鳴捕獲試料を ^{10}B に換えた検出器系による測定結果が実験誤差内でよい一致を示した。このことは、実験における系統的な誤差は小さく、それだけ本実験結果の信頼度が高いものと言える。

[参考文献]

- /1/ K. Kobayashi, S. Yamamoto, Y. Fujita, S.M. Lee, S. Kanazawa and Itsuro Kimura :
Annu. Rep. Res. Reactor Inst., Kyoto Univ., **23**, 1 (1990).
- /2/ S. Cierjacks (Ed.) : "*Neutron Physics and Nuclear Data in Science and Technology*"
Vol.2, Neutron Source for Basic Physics and Applications, OECD/NEA Report,
Pergamon Press (1983).
- /3/ V. McLane, C.L. Dunford and P.F. Rose : "*Neutron Cross Sections*" Vol.2 , Neutron
Cross Section Curves, Academic Press Inc (1988).
- /4/ Y. Fujita : "*Application of Filtered Neutrons to Precise Measurements of Neutron Cross
Sections*", Doctoral Thesis of Kyoto University (1984).
- /5/ K. Kobayashi, S. Yamamoto and Y. Fujita : Nucl. Instrum. Meth., **A287**, 570 (1990).
- /6/ G.F. Knoll (Ed.) : "*Radiation Detection and Measurement*", p.34, John Wiley & Son,
New York (1979).
- /7/ S. Sakamoto, E. Quang and G.F. Knoll : 1989 Fall Meeting of the Atomic Energy
Society of Japan, p.42, B-6 (1989).
- /8/ K. Kanda, M. Hayashi, H. Nakagawa and T. Shibata : Annu. Rep. Res. Reactor Inst.,
Kyoto Univ., **3**, 93 (1970).
- /9/ M. Fujishiro, R. Taniguchi, Y. Tsuji, E. Hiraoka, K. Okamoto, Y. Yoneda, T. Tsujimoto
and K. Katsurayama : Proc. of the Int. Symp. on Isotope Applications, Taipei, Dec, 4-5,
(1986).
- /10/ L. Stevens and T. Gourdon : CEA-R 3354, p.15 (1967).
- /11/ S. Nomoto, H. Yamamoto and Y. Sekiguchi, *Proc. of the Int. Symp. on Fast Reactor
Physics, IAEA-SM-244/8*, Vol.1, p.467 (1979).
- /12/ WREND 83/84, INDC(SEC)-88/URSF (1983).
- /13/ V. McLane, C.L. Dunford and P.F. Rose(Ed.), "*Neutron Cross Sections*", Vol.2,

- Neutron Cross Section Curves, Academic Press, Inc., New York (1988).
- /14/ L. Koester, K. Knopf and W. Waschkowski : Z. Phys., **A323**, 359 (1986).
- /15/ J.R. Granada, Private communication (1990).
- /16/ Y.A. Alexandrov, et al. : "*Measurement of the Neutron Total Cross Sections for Bi and Pb : Estimate of the Electric Polarizability of the Neutron*", Proc.Int'l Conf. on Nucl. Data for Sci., Springer-Verlag, p.160 (1992).
- /17/ J. Schmiedmayer, et al. : "*Electric Properties of the Neutron from Precision Cross Section Measurements*", *ibid.*, p.163 (1992).
- /18/ J.R. Granada, et al. : Physica B **190**, 259 (1993)
- /19/ L. Koester, et al. : Physica B **137**, 282 (1986).
- /20/ Y.A. Alexandrov, Yadernaya Fizika : **37**, 253(1983).
- /21/ K. Shibata, et al. : "*Japanese Evaluated Nuclear Data Library, Version-3, JENDL-3*", JAERI-1319, JAERI (1990).
- /22/ R.F. Rose(Ed.) : "*ENDF/B Summary Documentation*", BNL-NCS-17541, 4th Ed. (ENDF/B-VI) (1991).
- /23/ K. Kobayashi, et al. : "*Measurement of Capture Cross Section for ^{238}U and Sb*", Proc. Int'l Conf. on Nucl. Data for Sci., Springer-Verlag, p.65 (1992).
- /24/ 木村逸郎、山本修二 : "飛行時間分析用中性子検出器", KURRI-TR-89, 108 (1971).
- /25/ I. Kimura, K. Kobayashi, S.A. Hayashi, S. Yamamoto, M. Ando, S. Kanazawa, H. Nishihara and Y. Higashihara : Nucl. Instrum. Meth., **137**, 85 (1976).

Table 5-1. Transmission samples

Sample	Thicknes	Atom / barn
Sb (powder)	3 cm	0.0682 ± 0.00010
"	5 cm	0.1097 ± 0.00012
"	10 cm	0.2174 ± 0.00020
Pb - 208 (metal)	3.65 cm	0.12169 ± 0.000041
Pb - nat. (metal)	4 cm	0.13108 ± 0.000044

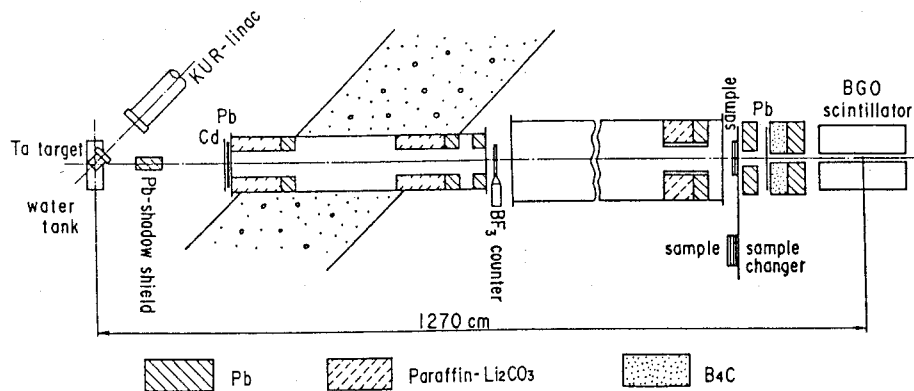


Fig. 5-1. Experimental arrangement for the measurement at lower energies.

Table 5-2 Experimental parameters and conditions

Experiment	Energy region in the present measurement					
	0.01~10eV	1.46, 4.91eV	5keV~3MeV	4~180eV	2~2000eV	24, 55, 145keV
Transmission Sample	Sb powder : 3, 5, 10cm thick	Sb powder : 3, 5, 10cm thick	Sb powder : 3, 5, 10cm thick	Pb-nat. metal : 4cm thick	Pb-nat. metal : 4cm thick	Pb-nat. metal : 4cm thick
Neutron source	White source	White source	White source	Pb-208 metal : 3.65cm thick	Pb-208 metal : 3.65cm thick	Pb-208 metal : 3.65cm thick
Flight path	12.7 ± 0.01 m	12.7 ± 0.01 m	22.13 ± 0.03m	White source	White source	Fe-, Si-filtered neutrons
Linac operation: pulse width pulse repetition rate average current electron energy	3 μs 25 Hz 100 μA ~30MeV	3 μs 25 Hz 100 μA ~30MeV	68 ns 250 Hz 10 μA ~31MeV	68 ns 250 Hz 30 μA ~31MeV	68 ns 250 Hz 30 μA ~31MeV	68 ns 250 Hz 30 μA ~31MeV
Neutron detector	BGO+ ¹⁰ B-plug	Res. capture det. (BGO+Au, In)	⁶ Li glass scintillator	Res. capture det. (BGO+Ta,Sb)	BGO+ ¹⁰ B-plug	BGO+ ¹⁰ B-plug
Background	Notch-filter Au, In, Sb, Cd	Self-indication: Au, In,	Block-off with borated paraffin (10cm thick)	Self-indication: Ta, Sb	Notch-filter : (Ta, Sb, Co,Mn)	Block-off with borated paraffin (10cm thick)
Overlap-filter	—	Cd (0.5mm)	Cd (0.5mm)	Cd (0.5mm)	Cd (0.5mm)	Cd (0.5mm)
Time analyzer: channel width number of channel	4, 8 μs 2048 x 4	4 μs 2048 x 4	0.02 μs 2048 x 4	0.5 μs 2048 x 4	0.25 μs 2048 x 4	62.5 ns 2048 x 4

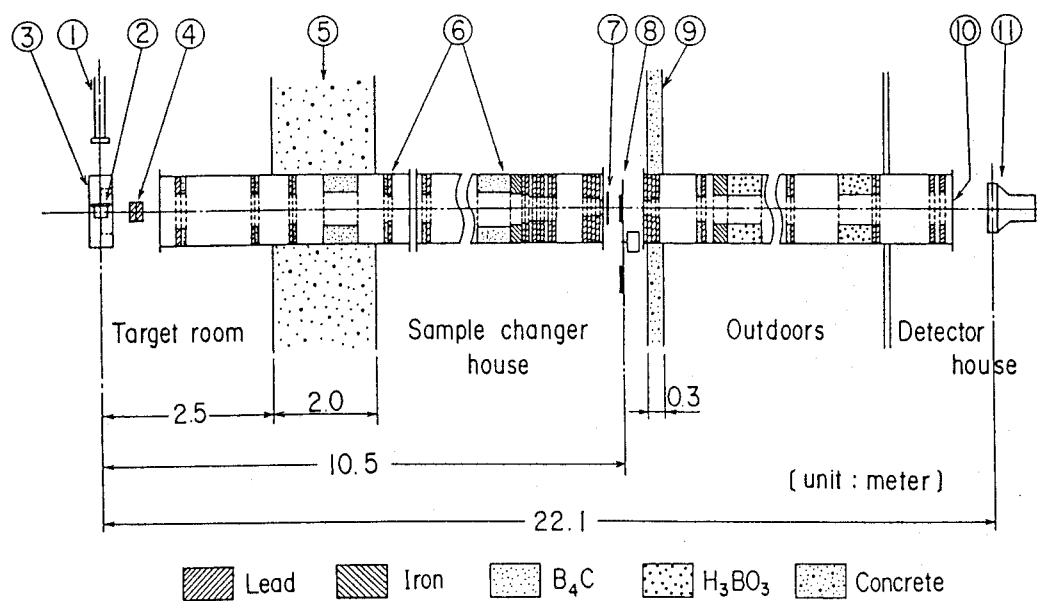


Fig. 5-2. Experimental geometry for the transmission measurement in the high energy region: (1) KURRI-linac, (2) water-cooled Ta photoneutron target, (3) water tank (moderator), (4) Pb-shadow shields, (5) concrete wall, (6) collimators, (7) BF_3 counter (neutron monitor), (8) sample changer, (9) concrete wall, (10) Maylar window, (11) 6Li glass scintillator.

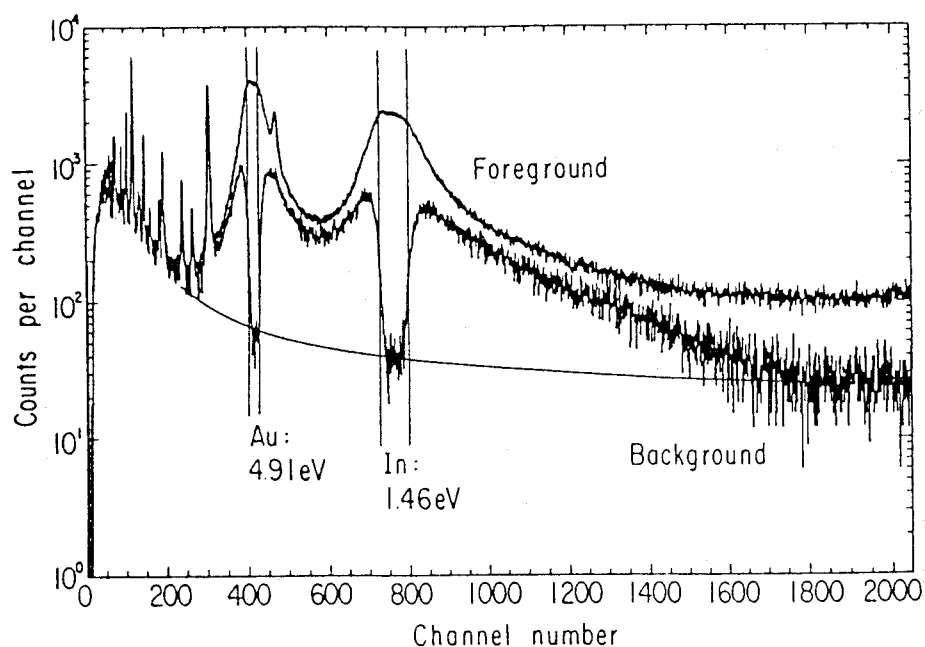


Fig. 5-3. An example of the foreground and background TOF spectra obtained with a resonance capture detector using In and Au samples.

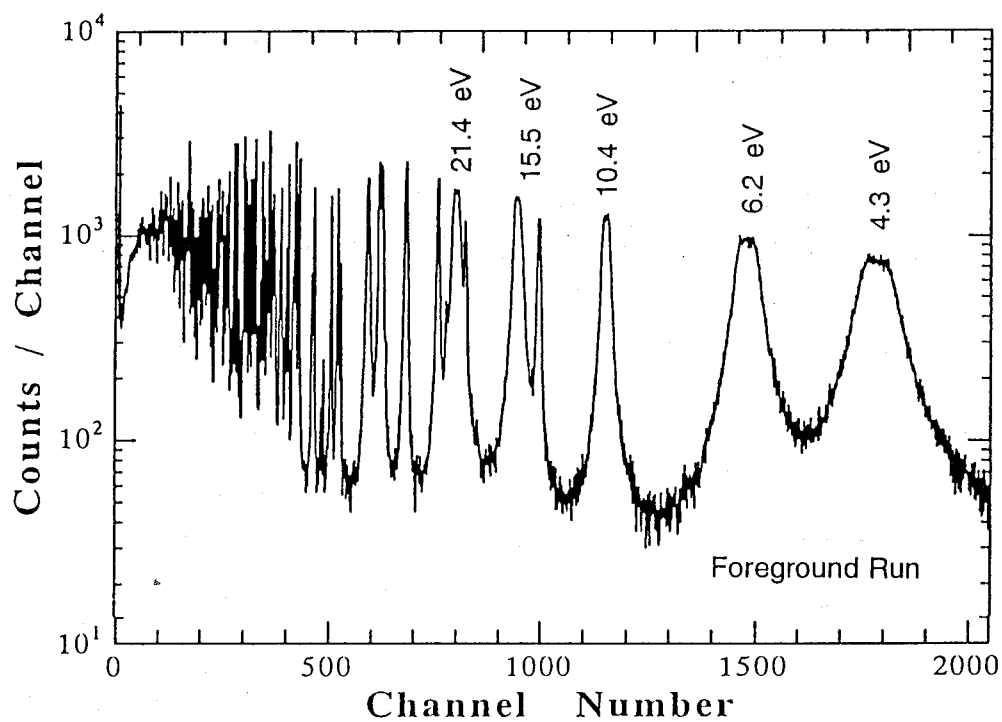


Fig. 5-4. An example of the foreground TOF spectrum obtained with a resonance capture detector using Ta and Sb samples.

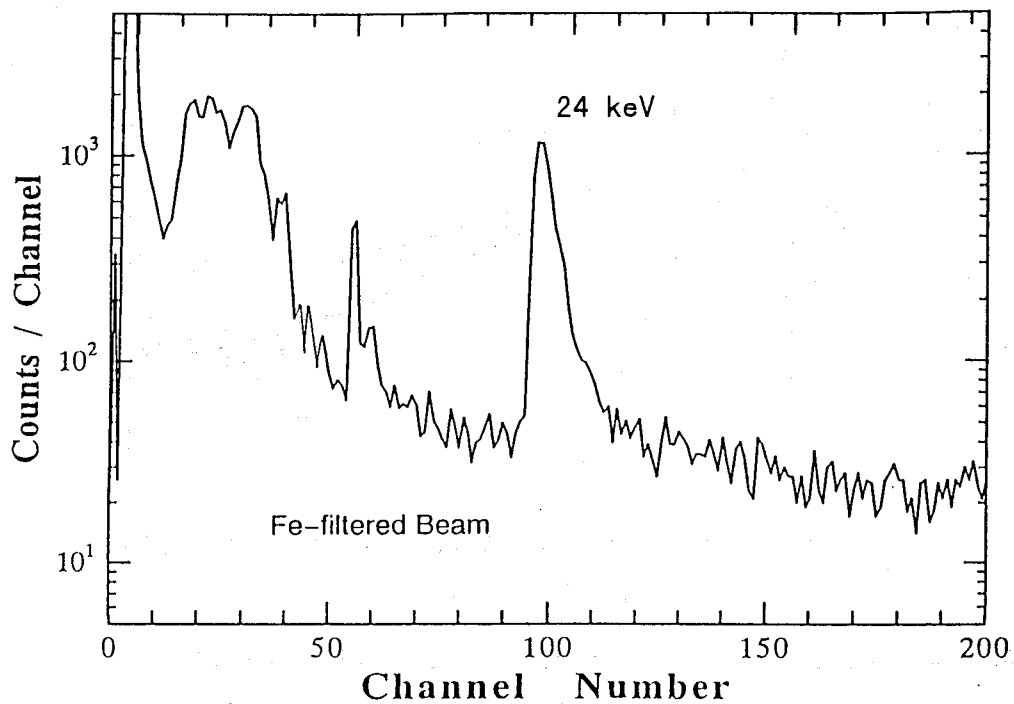


Fig. 5-5. TOF spectrum of Fe-filtered neutrons for the open beam.

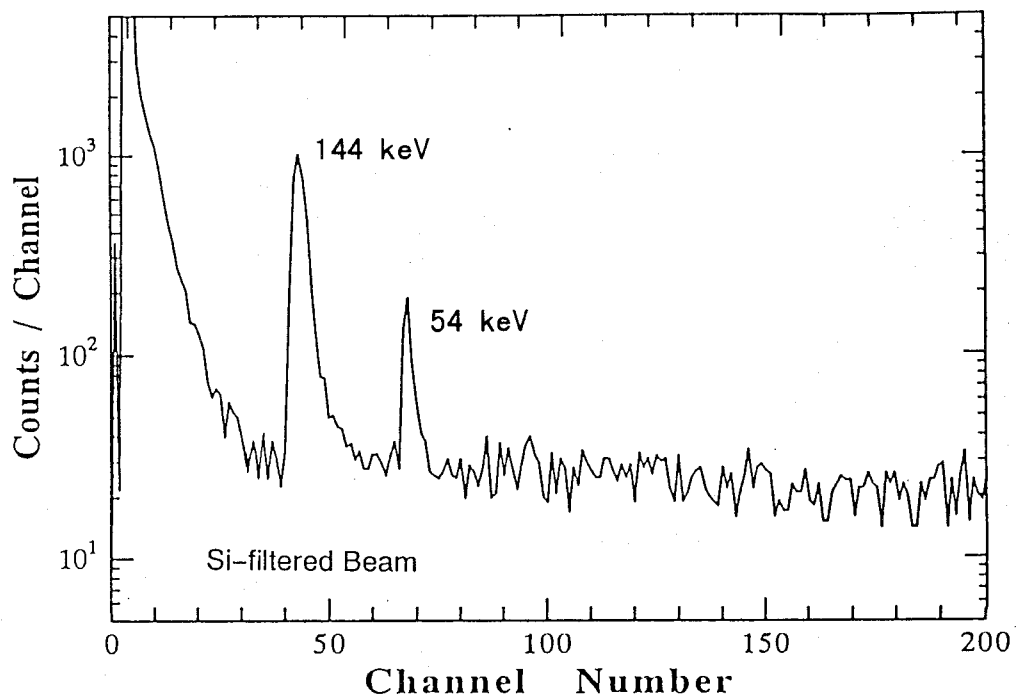


Fig. 5-6. TOF spectrum of Si-filtered neutrons for the open beam.

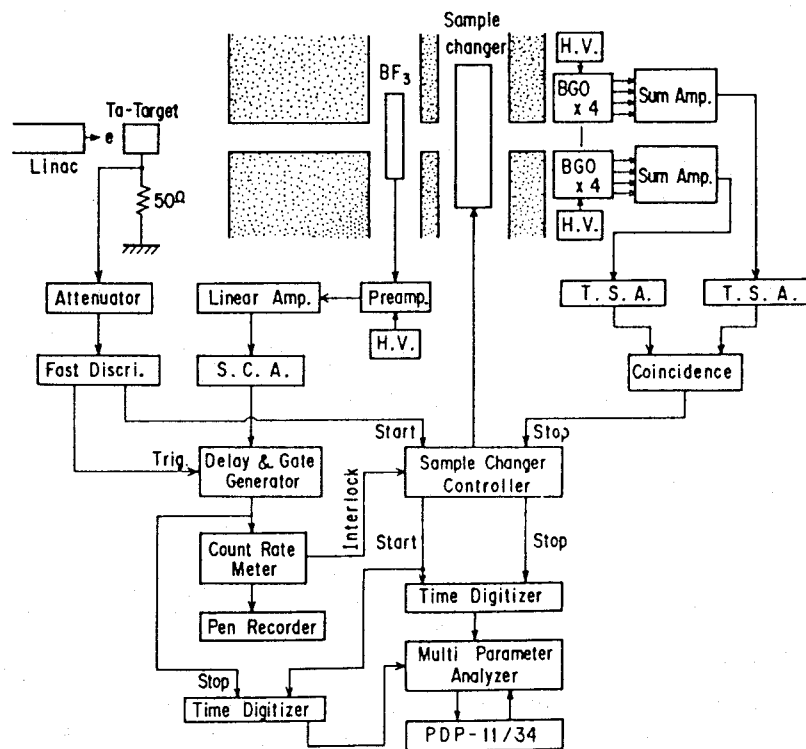


Fig. 5-7. Block diagram of the data acquisition system.

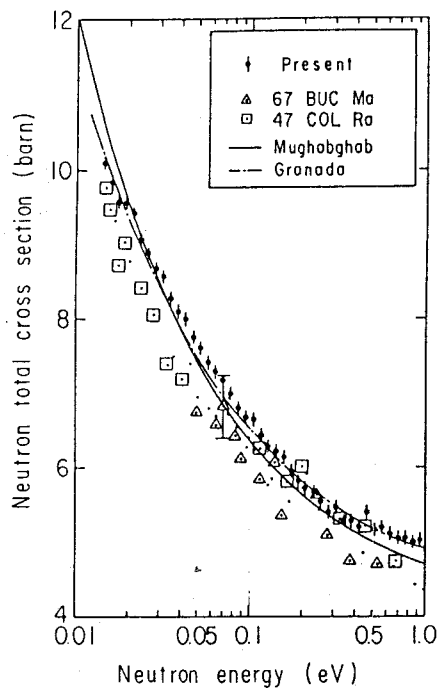


Fig. 5-8. Neutron total cross section of Sb in the lower energy region (0.01 eV to 1.0 eV).

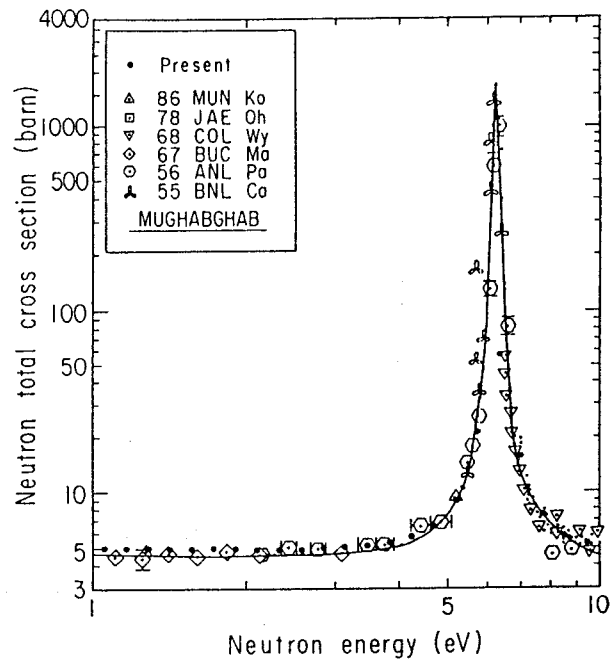


Fig. 5-9. Neutron total cross section of Sb in the lower energy region (1 eV to 10 eV).

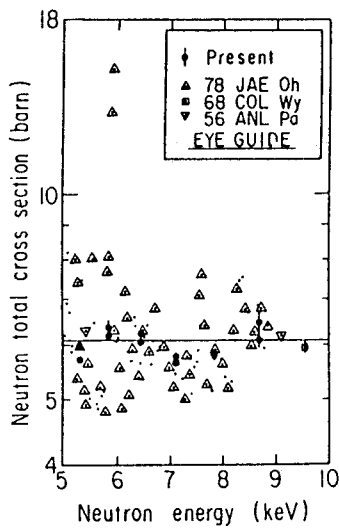


Fig. 5-10. Neutron total cross section of Sb in the higher energy region (5 keV to 10 keV).

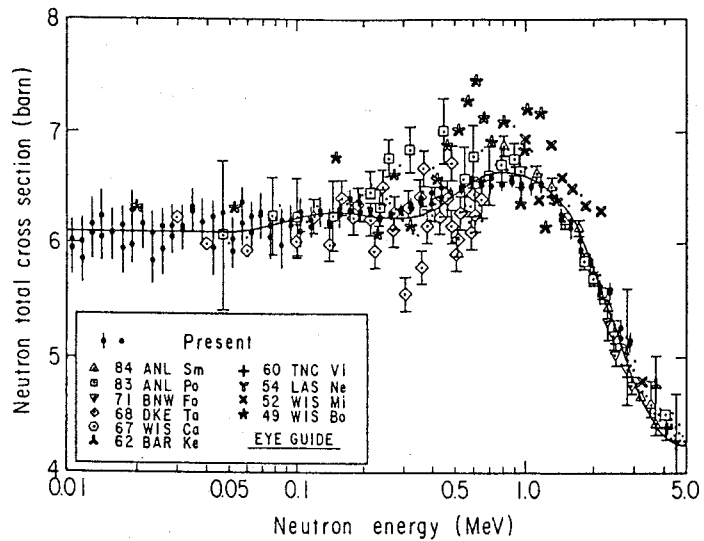


Fig. 5-11. Neutron total cross section of Sb in the higher energy region (10 keV to 5 MeV).

Table 5-3. Neutron total cross section of Sb measured with a resonance capture detector using In and Au samples

Resonance energy (eV)	FWHM (eV)	Cross section (b)
4.91 (Au)	0.95	6.943 ± 0.0298
1.46 (In)	0.27	4.830 ± 0.0207

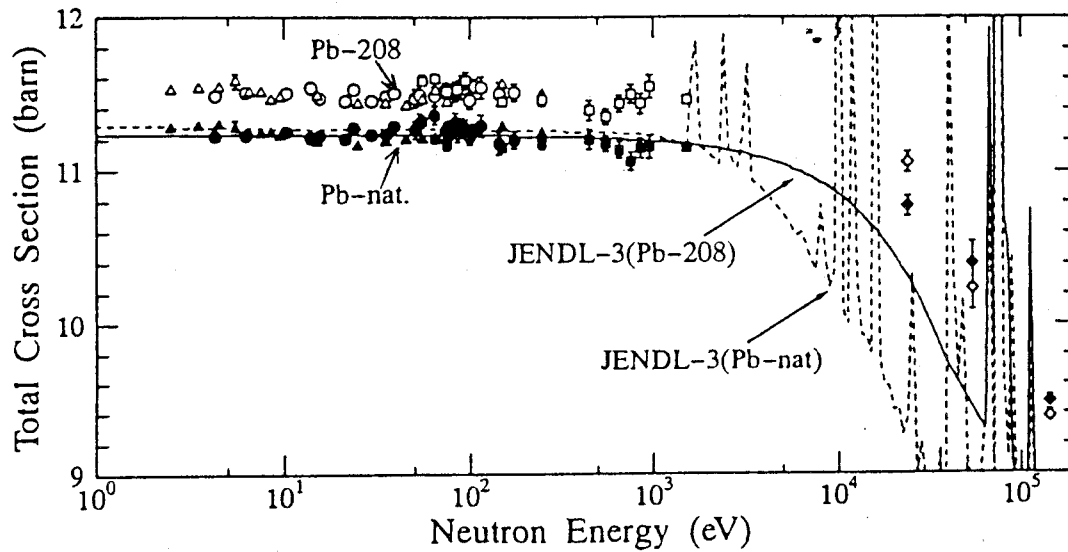


Fig. 5-12. Comparison of the present neutron total cross section of Pb-208 and Pb-nat with the evaluated data in JENDL-3.

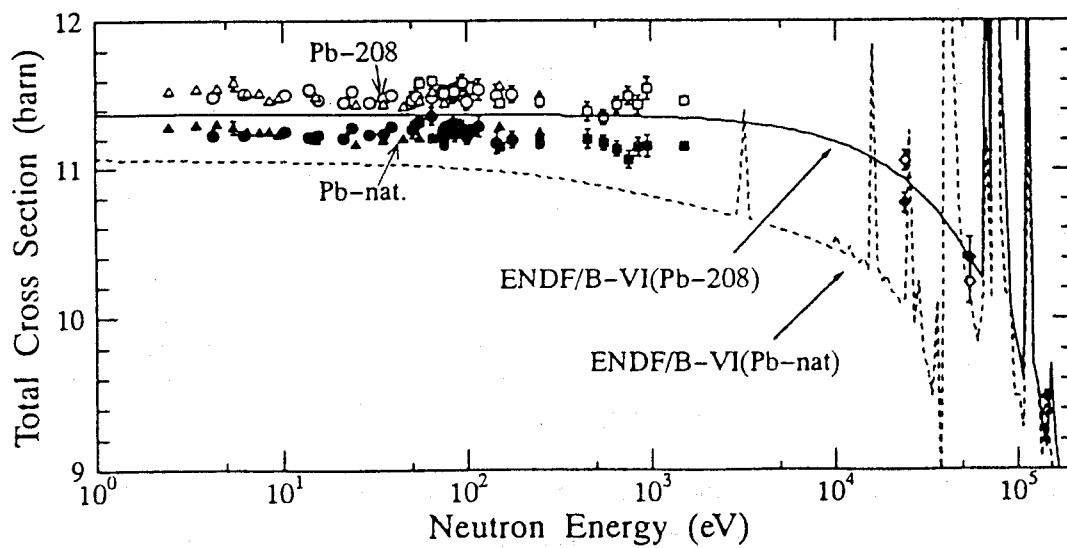


Fig. 5-13. Comparison of the present neutron total cross section of Pb-208 and Pb-nat with the evaluated data in ENDF/B-VI.

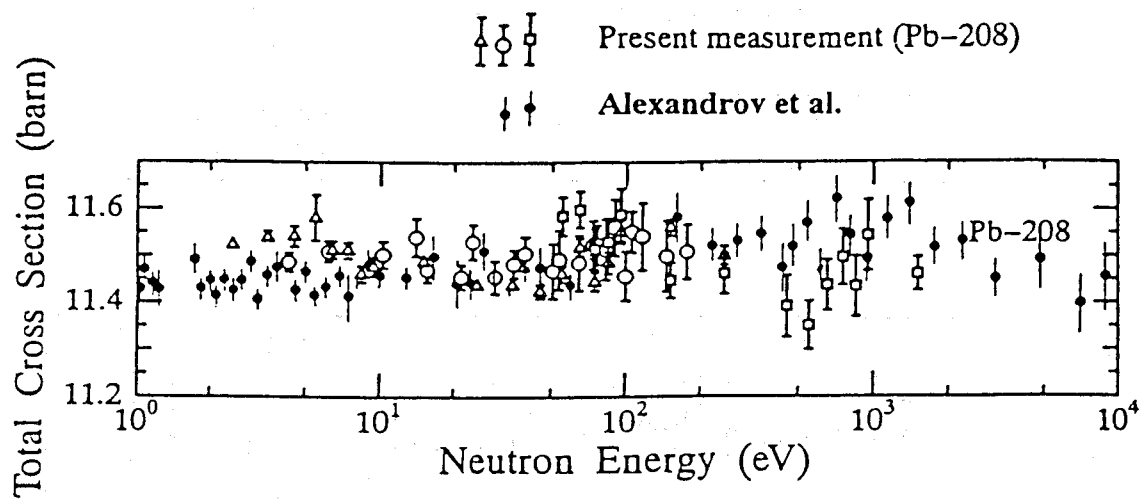


Fig. 5-14. Comparison of the present neutron total cross section of Pb-208 with the data measured by Alexandrov et al. /16/.

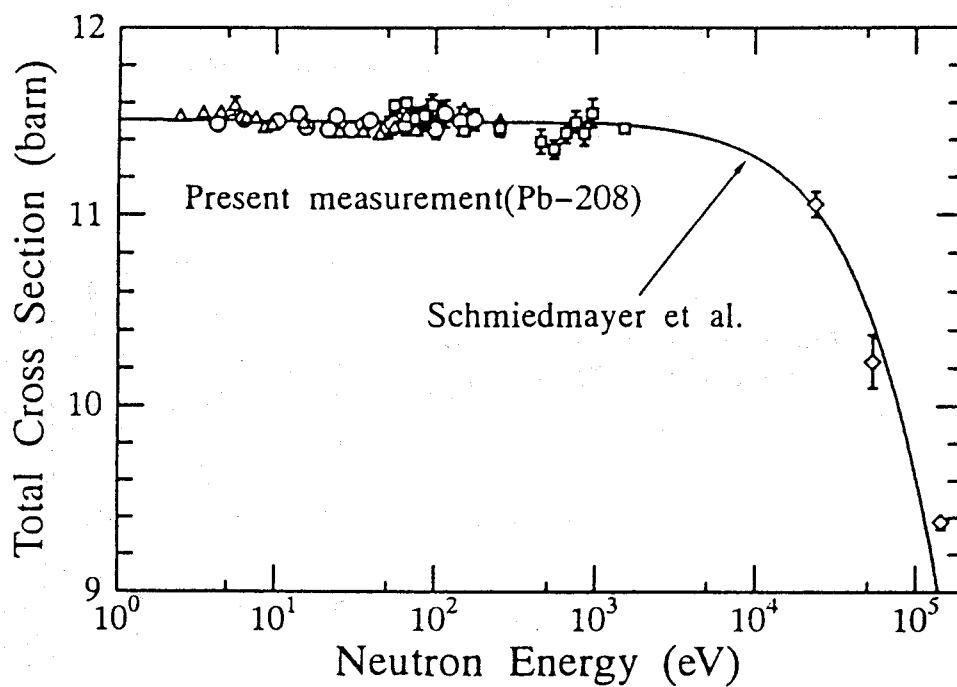


Fig. 5-15. Comparison of the present neutron total cross section of Pb-208 with the data obtained by Schmiedmayer et al. /17/.

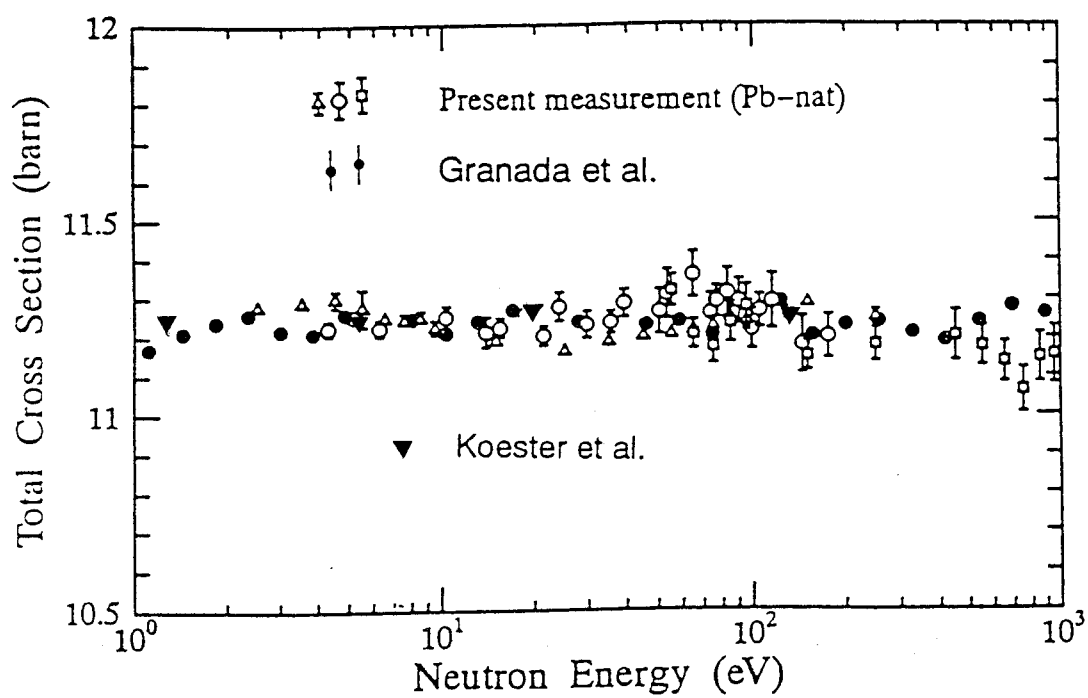


Fig. 5-16. Comparison of the present neutron total cross section of Pb-nat with the data measured by Granada et al. /18/ and Koester et al./19/.

第6章 鉛減速スペクトロメータの構築とその特性 に関する研究

第6章 鉛減速スペクトロメータの構築とその特性に関する研究⁽¹⁾

第1節 緒言

鉛のように重い核で、かつその中性子吸収断面積が小さい物質からなる大きな体系（一辺が 1.5~2m）の中心にパルス状高速中性子を打ち込むと、中性子は体系から殆んど漏れ出ることなく、まず非弾性散乱をした後、0.57 MeV以下では弾性散乱を多数回繰り返しながら減速していく。Lazareva & Feinberg はこうした現象に着目し、減速時間によるスペクトロメータの可能性を示唆した^{/2/}。この考えをもとに Bergman等は大きな鉛体系を初めてスペクトロメータとして中性子捕獲事象測定に応用した^{/3/}。それ以後、幾つかの研究所や大学において、鉛減速スペクトロメータ（または単に「鉛スペクトロメータ」とも言う）が設置され、中速から共鳴エネルギー領域における中性子捕獲や核分裂断面積の測定に応用されてきた^{/3~9/}。

鉛減速スペクトロメータのエネルギー分解能は、次節に示すように核的な特性により約30 %に及ぶ^{/3/}。この点が鉛減速スペクトロメータの最大の短所と言える。しかし、鉛減速スペクトロメータの最大の特長は、中性子源から僅か数10cmの場所で実験を行うこともあって、強力な中性子束が得られることである。例えば、通常の飛行時間分析実験（飛行路が5 mの場合）に比べ、中性子強度が数千倍から1万倍にもなる^{/9/}。しかし、従来において使用されてきた鉛減速スペクトロメータでは、通常、パルス中性子源として小型のD-T中性子源が使用されており^{/3/}、試料位置における照射の中性子束は必ずしも十分でなく、極微量試料や高いバックグラウンドを与える放射性試料の断面積測定において質的飛躍をなすまでには至らなかった。その後、電子線形加速器（ライナック）がD-T中性子源に替わるパルス状光中性子源として使用されるようになると、従来より約100倍も高い中性子束をもつ鉛減速スペクトロメータが誕生した。米国のレンスラー

工科大学 (RPI) では、鉛減速スペクトロメータと電子線形加速器を組み合わせたレンスラー強力中性子源 (RINS) を設置している/9/。RPIグループは、これを用いて約 1 eV～数10 keV のエネルギー領域における ^{238}U や ^{232}Th の sub-threshold 核分裂断面積の測定/9, 10/、超ウラン元素の核分裂反応面積の測定/11～13/を行ったほか、最近では使用済み燃料の非破壊検査にも応用している/14/。これらの実験においては、反応断面積が μb オーダと小さかったり、実験試料の入手量が極めて制限される等の実験上不利な条件下にあっても測定が可能となった/9, 10/。Slovacek 等は、鉛減速スペクトロメータを用いて核分裂断面積を測定する場合、測定可能条件として「 $1\ \mu\text{g}\cdot\text{b}$ 」という表現を使っている/9/。即ち、 $1\ \mu\text{g}$ 以上の試料があれば $1\ \text{b}$ の核分裂断面積の測定が可能であり、 $1\ \text{g}$ 以上の試料があれば $1\ \mu\text{b}$ の核分裂断面積が測定可能となる一つの目安を示している。

京都大学原子炉実験所においても、(1) アクチノイド核種など、それ自身が放射性の試料であり、実験上のバックグラウンドが高いもの、(2) 核分裂生成物 (FP) 核種など、試料を多量に入手することが困難となる核種、(3) 核理論の面などから興味をもたれる反応で、断面積が極めて小さいため従来の実験法では測定が困難とされる場合などに関する研究への応用を目的として、既設の電子線形加速器 (KURRI-LINAC: 最高電子エネルギー 46 MeV) /15, 16/ をパルス中性子源とする京都大学鉛減速スペクトロメータ「KULS」 (Kyoto University Lead Slowing-down Spectrometer) が設置された/1/。

本章では、鉛減速スペクトロメータ (KULS) の設置とそれに伴って行なった KULS の特性に関する研究について述べる。特性試験では、まず、中性子減速時間とエネルギーの関係及び中性子エネルギー分解能を共鳴フィルターを用いる方法により測定した。次にこれらの特性を連続エネルギーモンテカルロコード MCNP /17/ を用いた計算と比較した。次に、鉛減速スペクトロメータ内の中性子束分布及び中性子スペクトルを放射化箔データを用いて求めた。さらに、KULS 内の角度依存中性子スペクトルを ENDF/B-IV/18/、ENDL-85/19/ 及び JENDL-3/20/ の各評価済データファイルを用いた MCNP コードによって計算し、中性子飛行時間分析法に

よる測定結果と比較検討した。

第2節 鉛減速スペクトロメータの原理

鉛は、原子番号が 82、質量数が207と大きい物質であるため、中性子が鉛との衝突によって低エネルギーまで減速するためには（1 衝突当たりのレサジーの平均増加量： $\xi = 0.0096$ ）、多数回の衝突を繰り返すことになる（例えば、1 MeV の中性子が0.1eVになるまで：1680回）。また、鉛の中性子断面積は殆んどが弾性散乱断面積（2200m/s 中性子に対して、11.2 b）であり、中性子捕獲断面積が小さいため（2200m/s 中性子に対して、0.17 b）、パルス状の高速中性子が大きな鉛の体系に打ち込まれると、鉛による中性子の吸収は殆んど無く、また体系からの漏れが少ないため、中性子は体系内に長く留まりながら低エネルギーまで減速されていく。この場合打ち込まれた高速中性子は、まず非弾性散乱をした後、0.57 MeV以下では弾性散乱を多数回くり返す中で、比較的狭いエネルギー幅の中性子束群となり、その平均エネルギーと中性子打ち込み後の減速時間との間には1対1の対応関係が保たれる。

鉛体系内に打ち込まれた高速中性子の時間的な振る舞いは、次のような時間依存減速方程式によって与えられる/21/。

$$\frac{dn(v,t)}{dt} = -v \Sigma_s n(v,t) + \frac{2v}{1-\alpha} \Sigma_s n(v',t) \frac{dv'}{v'} \quad (1)$$

重核の均質媒質の内部で、弾性散乱によって減速して行く中性子の平均速さを v とすると、中性子の減速時間 t は次のように導かれる。

$$t = A \lambda \left(\frac{1}{v} - \frac{1}{v_0} \right) = \frac{A \lambda}{v} = \frac{A}{v \Sigma_s} \quad (2)$$

ここで、 v_0 は中性子の初期速さ（ $v_0 \gg v$ を仮定している）、 A は散乱媒質の質量数、 λ は散乱の平均自由行程、 Σ_s は散乱断面積である。中性子の平均エネルギー $E(\text{keV})$ は、次式によって減速時間 $t(\mu\text{s})$ の自乗に反比例することが分かる。

$$E = \frac{1}{2} m v^2 = \frac{1}{2} m \left(\frac{A}{t \Sigma_s} \right)^2 = \frac{K}{t^2} \quad (3)$$

ここで $K(\text{keV} \cdot \mu\text{s}^2)$ は減速時間定数である。実際の測定においては、減速時間にゼロ時間補正項 t_0 が入るため、(3)式において一般的には t に代わって $t+t_0$ が用いられる。エネルギー分解能は中性子速度の広がり（分散）によって決まり、

$$\left(\frac{\Delta E}{E}\right)^2 = \frac{\langle E^2 \rangle - \langle E \rangle^2}{\langle E^2 \rangle} = \frac{8}{3A} \quad (4)$$

で与えられる/21/。半値幅は標準偏差 $\Delta E/E$ の2.35倍であるから、鉛減速スペクトロメータにおける理想的な条件下でのエネルギー分解能（半値幅）は27%と導ける。

第3節 京都大学鉛減速スペクトロメータ（KULS）の設置

京都大学原子炉実験所に付設されている鉛減速スペクトロメータは、当初、東京大学工学部に設置され（昭和43年）、その後、同大学原子力総合研究センターに移管された「鉛減速時間スペクトロメータ（LESP）」/6/を、平成3年になって京都大学原子炉実験所の方に譲り受けたもので、46 MeV 電子線形加速器（ライナック）と組み合わせた京都大学鉛減速スペクトロメータ（KULS）として実験に使用されることとなった/1/。

本鉛減速スペクトロメータは、 $10 \times 10 \times 20 \text{ cm}^3$ の大きさを持つ高純度鉛（99.9%）ブロック約1600個を一辺 1.5 mの立方体形に積み重ねたもので、その総重量は約40トンである。Fig.6-1 に装置の設置場所を、Fig.6-2 に装置の概観図を示す。本装置は、鉛ブロックを積み上げるとき、表面の酸化膜や油分、水分を除去するため、サンドペーパーやワイヤブラシで1個ずつ丁寧に研磨し、エタノールで十分洗浄を行っている。これは、水素系、炭素系化合物（特に水分、油脂）のような質量の小さい物質の混入により、スペクトロメータの性能が低下する（減速定数が小さくなる、また分解能が悪くなる）のを防止するためである。体系全体は、室内散乱中性子が体系内へ再入射しないように、厚さ 0.5 mm のカドミウム板で覆われている。スペクトロメータの中央部には、Fig.6-3 に示したよ

うに、パルス状の中性子発生源となるタンタルターゲットがセットされており、その周囲に11個の実験孔が配置されている。

本鉛減速スペクトロメータKULSの設置に当たり、以下のような改良が加えられた。

(1) 京都大学原子炉実験所電子線形加速器（ライナック）のターゲット室に鉛減速スペクトロメータを設置（Fig. 6-1）するとき、従来から進めてきた実験も支障なく行えるよう、ターゲット室の床面の補強工事を行い、鉛体系全体を頑丈な台車の上に乗せてレール上を移動できるようにした。

(2) LESPには、中心付近に貫通孔、その後方と上部にも実験孔があったが/6/、Fig. 6-3 に示すように、今回はさらに8ヶ所に角柱型実験孔（断面 $10 \times 10 \text{ cm}^2$ 、奥行き45cm～55cm）を新設した。

(3) 新設実験孔の内、1ヶ所はその周辺を厚さ10～15 cmのビスマス層で覆う構造とした。鉛から放出される中性子捕獲ガンマ線は6～7 MeVと高いが、ビスマスのそれは約4 MeVと低い/22/。そこで鉛の高エネルギーガンマ線により、約6 MeVにしきい値をもつ(γ, f)反応が核分裂実験用試料において起こらないように/10/、ビスマス層で遮蔽された低ガンマ線量場のビスマス実験孔を設けた。

(4) KULSのほぼ中央部に金属タンタルターゲットを置いて、パルス状高速中性子を発生させるが、電子線形加速器のドリフトチューブはスペクトロメータ入口までとし、加速器側の真空系が実験系によって乱される恐れがないよう、加速器側と光中性子源用タンタルターゲットシステムとは独立させた。

加速器の運転条件によっては、ターゲットに打ち込まれる電子ビームは500W前後にもなるが、圧縮空気を流す冷却方式によりターゲットケースの表面温度を250℃前後以下に抑えて実験を行うことが可能であった。タンタルターゲットより得られる光中性子は、平均エネルギー約1 MeV前後のものが多く、 ^{235}U の核分裂スペクトルを低エネルギー側に約1 MeVシフトさせたエネルギー分布、広がりを持つスペクトル形状を示している/23, 24/。

第4節 K U L S における中性子輸送計算

京都大学原子炉実験所付設の46MeV電子線形加速器（ライナック）によって鉛スペクトロメータ K U L S 内に打ち込まれたパルス状高速中性子が鉛体系内で散乱されながら徐々に減速してゆく様子を時間スペクトルとして、連続エネルギーモンテカルロコードMCNP/17/を用いて計算した。このコードは、連続エネルギーで中性子とガンマ線の輸送計算を行う計算コードであり、パルス状中性子に対する固定中性子源問題として中性子の時間的变化を 10^{-8} 秒の時間間隔毎に追跡することが可能である。従って、MCNPは鉛減速スペクトロメータ内における中性子の時間的な振舞いを求めるために適したコードと言える。米国RPIの研究グループにおいても鉛減速スペクトロメータ(RINS)内の中性子の挙動（時間スペクトル、エネルギー分解能など）を求める計算に、本コードを使用している/25/。

本計算では、3次元x-y-z座標系によりKULSが設置されている鋼鉄製台車、KULS内部に設けたビスマス実験孔部、体系を覆ったカドミウム板、中性子源の位置など実際に即した配置を採用した。計算の入力として飛行時間分析法によって求めたタンタルターゲットの光中性子源スペクトルを用いた/24/。MCNPの計算場所（10cm x 10cm x 10cmの Tally box）は、ビスマス実験孔、その反対側にある鉛実験孔、及び中性子源前方 12.5 cmにあつて中性子飛行時間分析法によるスペクトル測定点とした。計算には、ENDF/B-IV/18/より作成され、MCNPコード用に内蔵されている断面積ライブラリを使用した。比較のために JENDL-3/20/、ENDL-85/19/から作成されたデータによる計算も行つた。

タンタルターゲットでパルス状の高速中性子発生後、 $1.6\mu\text{sec} \sim 230\mu\text{sec}$ でのビスマス実験孔における時間依存中性子スペクトルの計算結果をFig. 6-4に示す。高速中性子のエネルギー領域では、入射中性子源スペクトルの広がりがあるまま広いエネルギー幅となっているが、やがてガウス分布に近い漸近形を保ちながら減速していく様子が分かる。 0.8keV 、 2.31keV 、 12.09keV に見られる小さなへこみはビスマスの共鳴による影響が現れているものと考えられる。

Fig. 6-4 に示した時間依存中性子スペクトルの計算結果から K U L S の（1）減速定数、（2）エネルギー分解能、（3）減速中性子スペクトルが得られる。減

速定数は減速時間とエネルギーの関係から、エネルギー分解能はそれぞれの減速時間に対応した中性子スペクトル形状をガウス関数によってフィッティングし、その半値幅から各エネルギー点での分解能を算出した。スペクトロメータ内の定常中性子スペクトルは、鉛体系中に高速中性子パルスが打ち込まれた後、高速中性子が熱中性子近辺まで減速するまでの全時間について積分することにより求まる。

第5節 KULS特性実験の方法

5-1 中性子減速時間とエネルギーの関係

KULSにおける中性子減速時間とエネルギーの関係は、ビスマス実験孔及びその反対側上方にある鉛実験孔において測定した。両測定の位置は共に実験孔の底（深さ45 cm、55 cm）で、光中性子源用ターゲットから約40 cmの距離にある。KULSのエネルギー軸較正及びエネルギー分解能は、Table 6-1に示した物質（フィルター）を用いて、中性子透過率及び中性子捕獲ガンマ線の測定法によって求めた。これらのフィルターは（1）共鳴ピークが大きく、その幅が狭いこと、（2）共鳴エネルギーが既知で、隣の共鳴ピークから十分離れていること、（3）共鳴ピークが大きいため薄いフィルター試料が使用できることなど、フィルターとして必要な条件を備えている。

まず、中性子透過率測定では、BF₃カウンター（直径1.2 cm、有効長5.0 cm、内圧1気圧）を用意し、これを共鳴フィルターでカバーした場合と共鳴フィルター無し（BF₃カウンターのみ）の場合について、中性子減速時間の関数として中性子計数を行い、両測定の比をとることにより中性子透過率スペクトルを得た。透過率スペクトルにはフィルターの共鳴エネルギーに対応した時間位置（即ちエネルギー点）にへこみが現れる。共鳴フィルターを換えながら、中性子透過率測定を繰り返し、共鳴エネルギー毎に減速時間とエネルギーの関係を求めた。次に、共鳴中性子捕獲ガンマ線による測定ではArガスカウンター（直径1.27 cm、有効長6.25 cm、内圧1気圧、Ar:97%, CO₂:3%）を用いたが、その減速時間スペクトル

には共鳴エネルギーに対応してピークが現れる。これを用いて共鳴エネルギーと減速時間の関係を求めた。なお、減速時間スペクトル測定では、加速器から打ち込まれた電子ビームパルスを経過分析器のスタート信号とし、BF₃カウンターまたはArガスカウンターからの信号をストップ信号とした。経過分析器のチャンネル巾は0.0625 μ s、0.125 μ s、0.25 μ s、0.5 μ sの何れかを適宜選び、マルチパラメータ分析器 (CANBERRA 88 series MP) によって4096チャンネルのデータ測定を行い、これをPC-98シリーズパーソナルコンピュータに転送後、データ処理を行った。

5-2 エネルギー分解能

本研究におけるエネルギー分解能測定も、先の Table 6-1 に示したように、大きくて鋭いピークを持つ共鳴フィルターを使い、BF₃カウンターを用いた中性子透過率測定法と、Arガスカウンターによる共鳴捕獲ガンマ線測定の方法に依った。まず、BF₃カウンターでは、中性子透過率測定において求めた時間スペクトルをガウス分布関数にフィットして求め、その半値幅からKULSのエネルギー分解能を算出した。中性子の透過時間スペクトルの測定例を Fig. 6-5 に示す。Ar ガスカウンターを用いたエネルギー分解能測定では、BF₃カウンターによる測定に用いた大きな共鳴のフィルターより、むしろカドミウムや銅試料に見られるデルタ関数状の極めて狭く鋭い共鳴ピークに注目した。Fig. 6-6 は、銅フィルターによる579eVと230eVの共鳴捕獲ピークについて測定した時間スペクトルの例である。KULSの持つエネルギー分解能の広がりを見ると、デルタ関数状の鋭い共鳴ピークを中性子透過率測定法によって測定することは困難である。また、透過率測定法では使用したフィルターの共鳴断面積にもある程度の幅があるため、これらに対する補正が必要となる。しかし、共鳴捕獲ガンマ線測定法では鋭い共鳴ピークの場合でも測定が可能であり、むしろ共鳴ピーク幅を考慮せずに分解能測定が行える長所がある。

5-3 放射化法による中性子束分布及び中性子スペクトルの測定

中性子放射化法は、簡便な方法として古くから利用されている代表的な中性子測定法の1つである。放射化試料は、直径10~12.7 mm、厚さ1 mm以下の箔状または直径1mm以内の線状のものが一般的に使用されている。こうした放射化箔類は、検出器として小型で、一般にガンマ線にも感ずることなく、取り扱いが容易、信号線を必要としない等の利点から原子炉の炉心内等における実験に適している。放射化によって得られた反応率データは、中性子エネルギーと照射時間に対する積分量となるが、適当なエネルギー領域に感度を持つ反応を組み合わせると、熱中性子から高速中性子領域の広い範囲にわたるスペクトルを求めることも可能となる。また、箔の重さ、即ち試料の原子数を調整すれば放射化反応に対する感度を調整することもできる。

以上のような理由から、ここではKULS内の中性子エネルギースペクトル及び中性子束の空間分布測定に放射化箔法を採用することとした。

5-3-1 放射化箔と反応

中性子による箔の放射化反応には、核分裂反応の他に、熱、熱外中性子領域で感度の高い (n, γ) 反応と、主としてMeV領域の高速中性子に対して感度を持つしきい反応がある。本実験では、熱中性子からMeV領域の広いエネルギー範囲にわたって中性子スペクトルを求めることを目的としており、そのため (n, γ) 反応のみならず、幾種類かのしきい反応箔を組み合わせ使用した。

実験に使用した試料は、比較的入手し易く、照射及び誘導放射能の測定上、適切な形状を持った箔として直径12.7mm、厚さ0.5mm以下のものが主である。今回の実験に使用した反応、生成核の半減期と、これが崩壊に際し放出するガンマ線エネルギーとその強度をTable 6-2 に示す。

5-3-2 箔の中性子照射と誘導放射能測定

KULSのほぼ中央にはFig. 6-3 に見るように、水平貫通孔があり、その中心部において先のTable 6-2に示した多数組の放射化箔を照射した。

中性子照射による放射化箔の誘導放射能は高純度ゲルマニウム (HPGe) 検出器により測定した。実験データの処理は、次式に従い、照射、冷却、測定時間を補正して、計数値、ガンマ線検出効率とその強度、箔の重さ (原子数) 等から、各反応に対する放射化の反応率 R を算出した。

$$R = \frac{\lambda \cdot M \cdot C}{0.602 \times 10^{24} \cdot \epsilon_{\gamma} \cdot m \cdot I_0 \cdot I_{\gamma} \{1 - \exp(-\lambda T_i)\} \exp(-\lambda T_w) \{1 - \exp(-\lambda T_m)\}}$$

ここで、

λ : 崩壊定数 $= \ln 2 / T (s^{-1})$ 、	I_{γ} : 放出ガンマ線の強度、
T : 半減期 (s)、	ϵ_{γ} : ガンマ線検出効率、
C : 計数値、	T_i : 照射時間 (s)、
M : 原子数、	T_w : 冷却時間 (s)、
m : 箔 (線) の重さ (g)、	T_m : 計測時間 (s)、
I_0 : 核種の存在比。	

5-3-3 中性子束分布及びスペクトルの測定

(1) 中性子束分布

高速中性子束については $^{58}\text{Ni} (n, p) ^{58}\text{Co}$ 反応を、低速中性子束については $^{197}\text{Au} (n, \gamma) ^{198}\text{Au}$ 反応を用いることとし、直径 1mm のニッケルワイヤーに 5 mm x 10 mm、厚さ 50 μm の金箔を 10cm 毎に取り付け、これを水平貫通孔、中性子源の前方にある水平実験孔及び上方にある垂直実験孔のそれぞれに 1 本ずつ配置した。また、金箔 (直径 12.7mm、厚さ 50 μm) 及び Mn-Cu 箔 (Mn:Cu=88:12、直径 12.7mm、厚さ 0.2mm) を用いてビスマス孔と鉛孔におけるカドミウム比 (カドミウムカバーの厚さ : 0.5mm) の測定も行った。

(2) 中性子スペクトル

放射化箔データから中性子スペクトルを求めるため、本研究では NEUPAC コード/26/ 及び SAND-II コード/27/ を用いたスペクトルアジャストメント法による解

析手法を使用した。

NEUPACコードによるスペクトルアジャストメント計算には、ENDF/B-Vの評価済核データをベースとして作成された断面積ライブラリーを使用した。これは、0.01 eVから16.4 MeV領域において135群の断面積データと各群間のデータにおける誤差行列ファイルからなっている。

本解析に用いたSAND-IIコードは、モンテカルロ法を用いた誤差解析や箔の自己遮蔽の補正ができるようにサブルーチンを追加した改良型のコード/28/である。スペクトルアジャストメントの計算には、最近作成されたJENDL Dosimetry File /29/を使用している。これは1 meVから20 MeVのエネルギー領域を641群に分割したもので、誤差行列ファイルも用意されている。

NEUPAC や SAND-IIコードによる中性子スペクトルのアジャストメント計算には、初期入力用のスペクトルが必要となる。本研究では、KULS内の光中性子源より約12.5 cm後方の放射化箔照射位置における中性子スペクトルを連続エネルギーモンテカルロコードMCNPで計算した結果を用いることにした。この場合、光中性子源となる鉛ターゲットからの中性子スペクトルは、以前、我々が実験的に求めたものを使用した/24/。計算上の幾何学的配置は実際の配置・寸法に合わせたものとし、JENDL-3より作成されたMCNPコード用ライブラリーによって計算した結果をスペクトルアジャストメント用コードの入力スペクトルとして使用した。

5-4 TOF法による中性子スペクトルの測定

本研究では、KULSの特性実験の一環として、22m飛行路を用いた中性子飛行時間分析（TOF）法により、鉛減速スペクトロメータ内部の中性子スペクトルを数eVから10MeVの範囲で測定した。この時の実験配置をFig. 6-7に示す。KULSのほぼ中央部にセットされた空冷タンタルターゲット製の光中性子源の後方約12.5cmの位置に、直径8cmの貫通孔が設けられている（Fig. 6-3）。その中央部まで飛行路側の鉛プラグを抜き取ることによってできた空孔（リエントラントホール）の底部から、ターゲット位置に対し90度方向に取り出された中性子を測定した。また、この時のバックグラウンドは、後方の鉛プラグを全て取り除き、貫通孔とし

た状態において測定した。本実験には、我々が従来より使用してきている ^6Li ガラスシンチレータ及び ^{10}B -ワセリンプラグ NaI(Tl)検出器を用いた。これらの中性子検出器の検出効率はボロン入り黒鉛の標準パイルを用いて実験的に較正されている/30/。両検出器は同一飛行路の軸上に設置されているため、 ^{10}B -ワセリンプラグNaI(Tl)検出器の使用時には ^6Li ガラス検出器を中性子ビーム外へ取り除いて実験を行った。中性子TOF測定は、タンタルターゲットに入射した電子ビームによる信号をスタートパルスとし、中性子検出器からの信号をストップパルスとした4096チャンネル時間分析器によって行った。この時のライナックの運転条件は、電流パルス幅：10nsec、繰り返し：180Hz、ピーク電流：約1A、電子エネルギー：約32MeVであった。ターゲットからの強いガンマフラッシュが検出器の応答を乱すことがないように厚さ2 cmの天然ウランフィルターを、また、前のパルスで発生した熱中性子のオーバーラップを防ぐために厚さ 0.5 mmのカドミウムフィルターをそれぞれTOFビーム中にセットした。中性子飛行時間とエネルギーの関係は、コバルトの132eV、マンガンの336eV及び2.37keV、鉄の27.7keVにある共鳴を利用して較正した。

第6節 KULS特性実験の結果と検討

6-1 減速時間とエネルギー

測定された中性子減速時間 $t(\mu\text{sec})$ と中性子エネルギー $E(\text{keV})$ の関係を Fig. 6-8 に示す。これらの測定データから関係式 $E=K/t^2$ の減速定数 K を最小2乗法によって求めた結果、ビスマス実験孔では $190 \pm 2 (\text{keV} \cdot \mu\text{s}^2)$ 、鉛実験孔では $156 \pm 2 (\text{keV} \cdot \mu\text{s}^2)$ を得た。今回の測定で得た鉛実験孔における減速定数 K の値は、東京大学から原子炉実験所に移設される前に若林らによって測定された値 $155 (\text{keV} \cdot \mu\text{s}^2)$ と非常によく一致している/6/。一方、Fig. 6-4に示したMCNPコードによる時間依存スペクトルの計算結果からビスマス実験孔の減速定数 K を求めた結果、 $191 \pm 3 (\text{keV} \cdot \mu\text{s}^2)$ が得られた。この値は、上述の実験結果と非常によく一致している。同様に、鉛実験孔における計算結果は $157 \pm 4 (\text{keV} \cdot \mu\text{s}^2)$ となり、

この値もまた今回の実験値及び若林らの実験結果とよく一致している。

6-2 エネルギー分解能

BF₃カウンターで測定した共鳴フィルターの中性子透過率データに対し、共鳴幅及び試料厚の補正を行った後の共鳴吸収によるへこみからエネルギー分解能（半値幅）を求めた。Arガスカウンターによる共鳴捕獲ガンマ線の測定では、銅の230 eV、579 eVとカドミウムの27.5 eVにあるシャープな共鳴部を利用して分解能を得た。ビスマス実験孔での測定結果をFig. 6-9及びTable 6-3 に示す。測定されたエネルギー分解能は、数eV～500 eVのエネルギー領域で37～40 % であり、これよりエネルギーが上がっても下がっても分解能は悪くなる傾向を示している。また、BF₃とArガスカウンターによる測定の結果は誤差内でよく一致している。鉛実験孔での測定結果をTable 6-3 に示す。

MCNPコードによる中性子時間依存スペクトルの計算結果(Fig. 6-4)から得たビスマス及び鉛実験孔におけるエネルギー分解能の値を実験値と比較してTable 6-3 に示した。ビスマス実験孔の計算値(約35%)が鉛実験孔の場合(約30%)より大きくなった理由は、鉛体系の一部にビスマスが入ったためである。両実験孔の実験値はともに約40%のエネルギー分解能を示し両者に差が現れていないのは、実験誤差や第7節で述べること等が重なり合ったためと思われる。実験値が計算値より大きな値を示していることについては第7節で議論する。

6-3 放射化法による中性子スペクトル及び中性子束分布の測定

14種類の放射化反応とSAND-II/27, 28/及びNEUPACコード/26/を用いて中性子スペクトルのアジャストメントを行い、鉛減速スペクトロメータ内の中性子スペクトルを0.01eVから20 MeVの領域において求めた。その結果をFig. 6-10に示す。図の縦軸(中性子束)は、放射化反応率データをもとに絶対値で与えられている。アジャストメントスペクトルの解析誤差は、何れのコードを用いた場合も2～3%、放射化反応の応答感度が低い領域(10 MeV以上、及び数100 keV以下の領域)で7～8% の範囲にある。両スペクトルは、異なる解析コードによる結果であるが、1 MeV付近を除けば互いによく一致している。スペクトルの形状はMeV領域で入力

中性子源スペクトルに近く、それ以下では1/E型よりも硬くなっていることが分かる。1 MeV付近の違いは、しきい反応に関する断面積ライブラリー間の違いによるものと考えられる。

Au及びMn-Cu箔を用いたカドミウム (Cd) 比測定の結果、何れの値もほぼ1に近くなったことからKULS内には熱中性子はほとんど存在しないことが分かる。また、14種類の放射化箔データの内 $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$ 反応のデータとその中性子スペクトル平均断面積を用いて、中性子源の後方12.5cmにおける高速中性子束を算出した。その結果、得られた高速中性子束の値は、 $2.9 \times 10^8 \text{ n/cm}^2/\text{sec}$ であった。ただし、この値はLINAC運転のビーム電力を100 Wに規格化したもので、実際の照射はビーム電力 63 Wで行った。この結果は、Fig. 6-10に見られるスペクトルの1 keV～20 MeV間の積分値とよく一致している。鉛及びビスマス実験孔の底部(中性子源から 35 cm、50 cm)においてもNi箔による測定を行った。それぞれの結果は、 1.8×10^7 及び $7.1 \times 10^6 \text{ n/cm}^2/\text{sec}/100 \text{ W}$ 、中性子源からの距離とはほぼ逆比例の関係にある。これら中性子束の測定誤差は、5～7%であった。

KULS内における中性子束の空間分布測定の結果をFig. 6-11及びFig. 6-12に示す。Fig. 6-11は $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ 反応による熱外中性子束分布の測定、Fig. 6-12 は $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$ 反応による高速中性子束分布の測定結果である。熱外中性子束の前方向がやや高めに分布していることを除けば、KULS内での中性子束はほぼ等方に分布していると言える。さらに、Fig. 6-11、Fig. 6-12 からKULS内の中性子束分布を見る限り、実験孔の検出器をセットする場所では、KULSを設置したターゲット室内での散乱中性子による影響はほとんどないことが分かる。

6-4 TOF法による中性子スペクトルの測定

KULS内のタンタル製光中性子源の後方 $r=12.5 \text{ cm}$ の位置から入射電子ビームに対し $\theta=90^\circ$ 方向 ($\cos \theta = \mu = 0$) に取り出した角度中性子スペクトルを、 ^6Li ガラス及び ^{10}B -ワセリン-NaI(Tl)検出器を用いた中性子飛行時間分析(TOF)法により測定した。それぞれの検出器を用いて測定したKULS内の中性子スペクトルをFig. 6-13、Fig. 6-14に示す。両検出器による測定結果はよく一致しており、測定

スペクトルの系統誤差は小さいと言える。また、これらの図では、ENDF/B-IV、JENDL-3、ENDL-85ファイルから作成された断面積セットを用いたMCNP計算の結果とも比較している。測定値と各計算値のスペクトルを 100 keV 以上の領域において積分し、測定スペクトルの積分値を計算値のそれに規格化している。これらの図に示した測定データは、 $\Delta u=0.1$ レサジー幅毎に加算したもので、その統計誤差は 2~3%、低エネルギー部では~50%であった。計算スペクトルに見られる変動は、モンテカルロ計算の統計精度が良くないためで、10eV以下のエネルギー領域では~300%程度となっている。Fig. 6-13、Fig. 6-14に見られるように、10 keV付近より下のエネルギー領域では、ENDF/B-IVによる計算値が他の定数による計算及び実験結果より高めになっていることが分かる。このことはENDF/B-IVの鉛の評価済データについて再評価の必要性を示唆している。また、KULS内では低エネルギー、特に熱中性子は殆ど存在していないことが分かる。このことは、前述のカドミウム比測定の結果とも一致している。測定スペクトルの336 eV付近にあるへこみ構造は、鉛プラグの鋼製ケースに不純物として含まれているマンガンの共鳴によるものである。また、計算スペクトルにへこみ構造がないのは、不純物のマンガンを考慮していないためである。

Fig. 6-15では、NEUPACとMCNPコードによるスペクトルの計算結果が比較されている。100 keV以下の減速エネルギー領域では、全体として両スペクトルは一致している。100 keV以上での不一致は、使用した光中性子源の違いによるものである(鉛ターゲットはタンタルターゲットに比べて硬いスペクトルを示す/24/)。ここでも、Fig. 6-13、Fig. 6-14に見られるように、100keV以下の減速エネルギー領域において、ENDF/B-IVによる計算はNEUPACによる放射化データから求めたスペクトルより高くなっている。また、Fig. 6-11、Fig. 6-12に見られるように、中性子束の空間分布はほぼ等方であることから、スペクトル形状に関しては、角度中性子スペクトルとスカラースペクトル間に大きな差はないものと思われる。そこで、放射化箔データによって求めた中性子スペクトルとTOF法による測定結果を比較すると、両者は100keV以下の減速エネルギー領域においてよく一致していることが分かる。

第7節 討 論

KULSについて実験と計算の両面からその特性を調べてきた。その結果、中性子減速時間とエネルギーの関係及びエネルギー Spektral に関する実験と計算の結果はよく一致することを確認した。しかし、KULSのエネルギー分解能は理論的な予測値(27%)よりかなり大きいことも明らかとなった。このことに関連して、

(1) 鉛減速スペクトロメータの寸法、(2) 鉛ブロック中の不純物、(3) 中性子源 Spektral の形状に関わる3つの観点から、さらにMCNPコードを用いた計算を行い、KULSの特性を調べてみた。

まず、KULSの寸法 $1.5 \times 1.5 \times 1.5 \text{ m}^3$ (実効的な球の半径 $r=93.1 \text{ cm}$) 以外に、代表的な鉛減速スペクトロメータの寸法として $1.2 \times 1.2 \times 1.2 \text{ m}^3$ ($r=74.4 \text{ cm}$)、 $1.8 \times 1.8 \times 1.8 \text{ m}^3$ ($r=112 \text{ cm}$)、及び $2.0 \times 2.0 \times 2.0 \text{ m}^3$ ($r=124 \text{ cm}$) を選び、これらスペクトロメータ内の中性子束分布とエネルギー Spektral について次元計算を試みた。その結果、中性子源位置より10cm以上離れた半径方向位置では、中性子強度を除けば中性子減速時間とエネルギーの関係はスペクトロメータの寸法や中性子源からの距離に殆ど依存しないことが分かった。KULSからの中性子の漏れは、より大きなスペクトロメータに比べて多く、中性子源から30cm~40cm領域における10 keVと10 eVにおける中性子束を、半径 112 cm のスペクトロメータの場合と比較すると、それぞれ約70 %、35 %に相当した。Fig.6-16 は、スペクトロメータの寸法の違いによるエネルギー分解能の変化について示している。図が示すように、スペクトロメータの寸法が小さいほどエネルギー分解能は全体に大きく、高エネルギー領域では特に大きくなることが分かる。

もし、KULSがビスマスのみで作られていると仮定して減速定数 K を計算すると、 $K=308 (\text{keV} \cdot \mu \text{s}^2)$ となり、鉛のみの場合に比べて大きくなった。KULS内には10~15 cm厚のビスマス層で覆われた実験孔(ビスマス実験孔)があり、ここでは周辺が全て鉛で囲まれた実験孔(鉛実験孔)に比べて減速定数 K が大きくなっているが、その理由はビスマスがもつこの特性によって理解できる。

次に、KULS中に含まれる不純物がエネルギー分解能に与える影響について検討

した。鉛の硬化剤として添加されているアンチモン(重量%で0.05%)及び鉛ブロックの表面に付着した水分(H_2O 重量にして10~1000 ppmを仮定)を考慮した計算を行った。その結果、アンチモン不純物はエネルギー分解能に対して大きく影響しないが、熱外中性子の吸収には影響が現れて、中性子束が低下することが分かった。Fig. 6-13、Fig. 6-14 において、なぜ測定スペクトルが30eV付近以下でMCNP計算から外れているのか、その理由がアンチモンの中性子吸収によって説明できる。Fig. 6-17 は、エネルギー分解能がKULS中の不純物であるアンチモン及び水分に依存している様子を示している。図から分かるように、100 ppmまでの水分の付着は分解能に大きな影響を与えることはないようである。鉛ブロックの酸化あるいは何らかの水分が鉛の表面に付着したとしても、ブロック表面は注意深く洗浄して積み上げたので、10 ppm以上の水分が付着しているとは考えられない。KULSのエネルギースペクトルに関する限り、実験と計算の間にはよい一致が見られた。しかしながら、KULSの計算によるエネルギー分解能についてはTable 6-3 に示したように、実験値より5~10%程度小さな値となった。この違いについては未だ特定はできていないが、今回の計算には考慮されていない他の不純物の影響も考えられる。

異なるタイプの中性子源スペクトルとして、(1) タンタル光中性子源、(2) 14MeV中性子源、(3) 500keV中性子源(このエネルギーは鉛の非弾性散乱断面積のしきい値である570keVより低い)、の3種類の中性子源を用いてKULS内での中性子の減速の様子を調べてみた。14MeV中性子は鉛と数回の相互作用(散乱)によって、その時間依存中性子スペクトルはタンタル光中性子源に似たスペクトル形状になる。500keV中性子源による時間依存スペクトルは、Fig. 6-18に示したように、100 keV付近からすでに漸近形を示している。この場合、例えば100 eVでのエネルギー分解能は約28 %となる。一方、タンタル光中性子源を用いた場合、100 eVにおけるエネルギー分解能は約30 %である。このことは、KULSのエネルギー分解能は鉛による非弾性散乱過程によって悪くなることを意味している。

以上のことから、エネルギー分解能を悪化させる要因として、不純物の効果以

外に高速中性子の非弾性散乱による効果も考えられ、これらの要因が積み重なって実際の分解能が決まっている。

ところで、KULS内の中性子スペクトルはFig. 6-13、Fig. 6-14 と Fig. 6-15に見られるように単純であり、熱中性子がほとんど存在していないことから、高速増殖炉の大型炉心で得られる中性子スペクトルの形状に似ていると言える/32/。今回の実験と計算を通じて得られたKULSの特性は、将来においてエネルギー依存核データの測定のみならず、標準中性子場として積分実験への利用も期待できる。

第8節 結 言

電子線形加速器をパルス中性子源とした鉛減速スペクトロメータ KULS について、実験と計算によりその特性を明らかにした。本研究で得られた結果についてまとめると、

- (1) BF₃カウンターによる共鳴フィルターの中性子透過率測定とArガスカウンターによる共鳴フィルターの捕獲ガンマ線測定の実験から、中性子の減速時間とエネルギーの関係($E=K/\rho$)を特徴付ける減速定数 K を求めた。その結果、ビスマス実験孔で 190 ± 2 (keV · μ s²)、鉛実験孔で 156 ± 2 (keV · μ s²)を得た。
- (2) 同様の方法で実験的に求めたKULSのエネルギー分解能は約40%であった。
- (3) MCNPコードを用いたモンテカルロ計算の結果得られた減速定数 K の値は実験値とよく一致したが、エネルギー分解能については、実験値(約40%)より小さく、約30%となった。この違いについて、計算による検討を加えた結果、KULSの不純物、中性子源から放出された高速中性子と鉛の非弾性散乱による影響などが積み重なって起きたものと考えられる。
- (4) KULS内の中性子スペクトルを、SAND-II 及び NEUPACコードを用いた多数組放射化箔法と飛行時間分析法により求めた。これらの測定結果とJENDL-3、ENDF/B-IV、ENDL-85 断面積ライブラリーを用いた MCNP 計算の結果を比較したところ、100 keV以下のエネルギー領域で、ENDF/B-IV評価

データを用いた計算結果はTOF測定の結果より25～50% 程度大きくなったことを除けば実験値及び計算値はよい一致を示した。また、KULS内の中性子束空間分布を放射化法によって測定した結果、中性子源の周りではほぼ等方分布を示していることが分かった。

[参考文献]

- /1/ K. Kobayashi, S. Yamamoto, et al., : Nucl. Instrum. Meth., **A385**, 145 (1997).
- /2/ L. E. Lazareva, E. L. Feinberg, : Private communication by A. A. Bergman, (1950).
- /3/ A. A. Bergman, et al. : Proc. 1st Int. Conf. on Peaceful Use for Atomic Energy, United Nations, Vol. 4, p.135 (1955).
- /4/ Y.P. Popov : Proc. Lebedev Phys. Inst., Academy of Sci., USSR, Vol. 24, p. 111 (1964).
- /5/ F. Mitzel, et al. : Nukleonik **6** , 371 (1964).
- /6/ H. Wakabayashi, et al. : J. Nucl. Sci. Technol., **7**, 487 (1970).
- /7/ A. A. Bergman, et al. : Proc. Nuclear Constants, Obninsk Reports, Vol. 7, p.37 (1971).
- /8/ M. Fujino, et al. : J. Nucl. Sci. Technol., **13**, 566 (1976).
- /9/ R. E. Slovacek, et al. : Nucl. Sci. Eng., **62**, 455 (1977).
- /10/ Y. Nakagome, et al. : Phys. Rev., **C43**, 1824 (1991).
- /11/ H. T. Maguire, Jr., et al. : Nucl. Sci. Eng., **62**, 455 (1977).
- /12/ B. Alam, et al. : Nucl. Sci. Eng., **99**, 267 (1988).
- /13/ Y. Danon, et al. : Nucl. Sci. Eng., **109**, 341 (1991).
- /14/ N. M. Abdurrahman, et al. : Nucl. Sci. Eng., **115**, 279 (1993).
- /15/ K. Kobayashi, G. Jin, S. Yamamoto, et al. : Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ., Vol.22, p.142 (1989).
- /16/ K. Kobayashi, et al. : Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ., Vol.26, p.92 (1993).
- /17/ LA-7396-M, Rev. 2, Los Alamos National Laboratory (1986).
- /18/ D. Garber (ed.) : BNL-17541 (ENDF-201) (1975).
- /19/ R. J. Howerton, et al. : UCRL-50400, Vol. 15 (1975).
- /20/ K. Shibata, et al. : JAERI 1319 (1990).
- /21/ K. H. Beckurts & K. Writz : "*Neutron Physics*", p.167, Springer-Verlag, New York,

(1964).

- /22/ R. A. Charpie and J. V. Dunworth(ed.) : International Series of Monographs on Nuclear Energy, Division IV Isotopes and Radiation, Vol. 1, Pergamon (1961).
- /23/ K. Kobayashi et al. : Nucl. Sci. Eng., **99**, 157 (1988).
- /24/ Shu A. Hayashi et al. : Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ., **13**, 23 (1993).
- /25/ R. C. Little, et al. : Trans. Am. Nucl. Soc., **43**, 119 (1982).
- /26/ M. Nakazawa, et al. : Proc. 2nd ASTM-Euratom Symp. on Reactor Dosimetry, NEUREG/CP-0004, Vol. 3, p.1423 (1977).
- /27/ W. N. McElroy, et al. : Nucl. Sci. Eng., **27**, 533 (1967).
- /28/ Li Zhaohuan, et al. : Proc. 7th ASTM-Euratom Symp. on Reactor Dosimetry, held on 27-31, Aug. 1990, at Strasbourg, France, Kluwer Academic Publishers.
- /29/ M. Nakazawa, et al. : "*JENDL Dosimetry File*", JAERI 1325 (1992)..
- /30/ I. Kimura, et al. : Nucl. Instrum. Methods, **137**, 85 (1976).
- /31/ E. Browne and R.B. Firestone : "*Table of Radioactive Isotopes*", Wiley-Interscience, New York (1986).
- /32/ A. E. Walter and A. B. Reynolds : "*Fast Breeder Reactors*", p.710, Pergamon New York (1981).

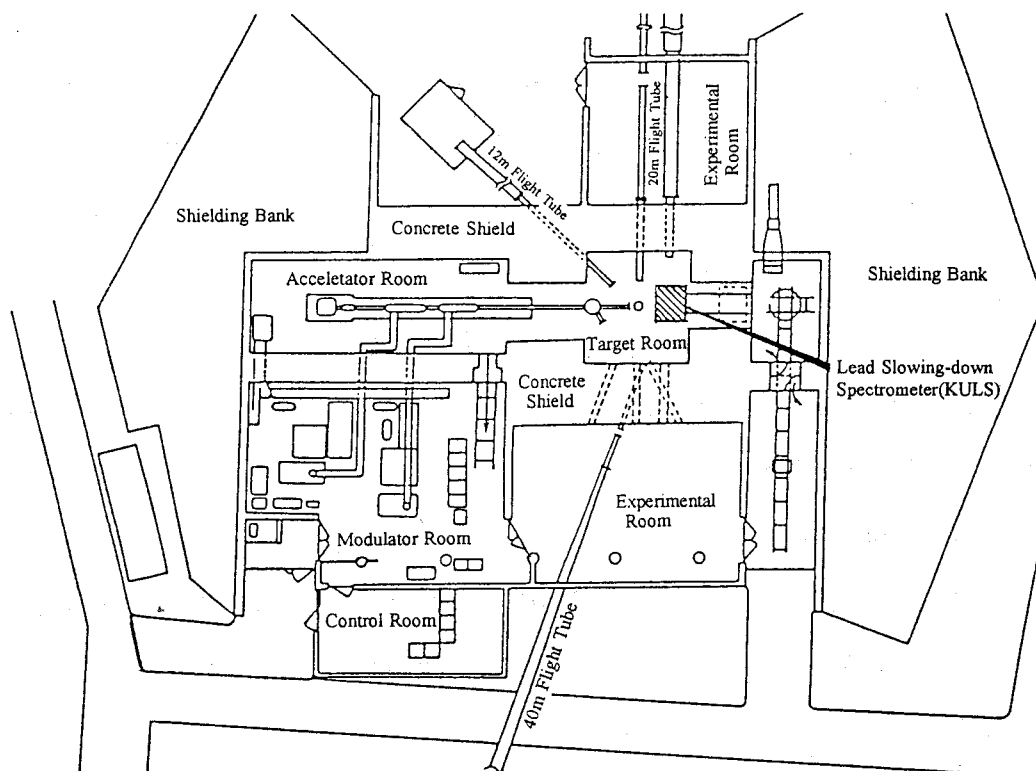


Fig. 6-1. Kyoto University lead slowing-down spectrometer (KULS) installed in the target room of KURRI-linac facility.

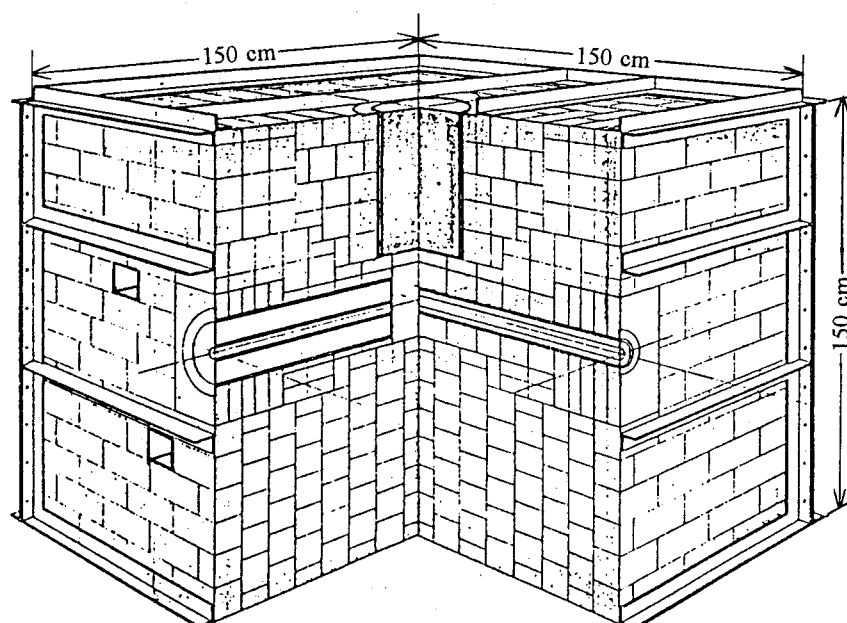


Fig. 6-2. General view of the lead slowing-down spectrometer (KULS).

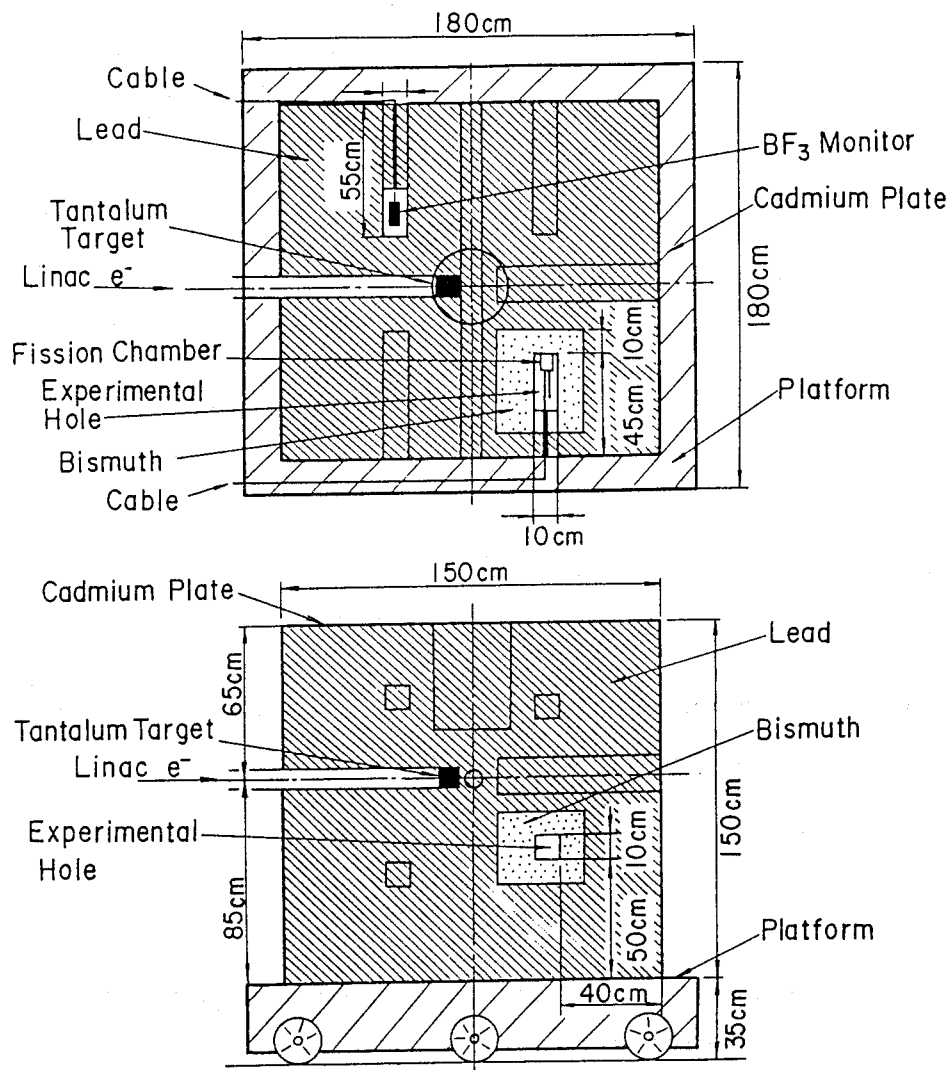


Fig. 6-3. Cross-sectional view of Kyoto University lead slowing-down spectrometer (KULS)

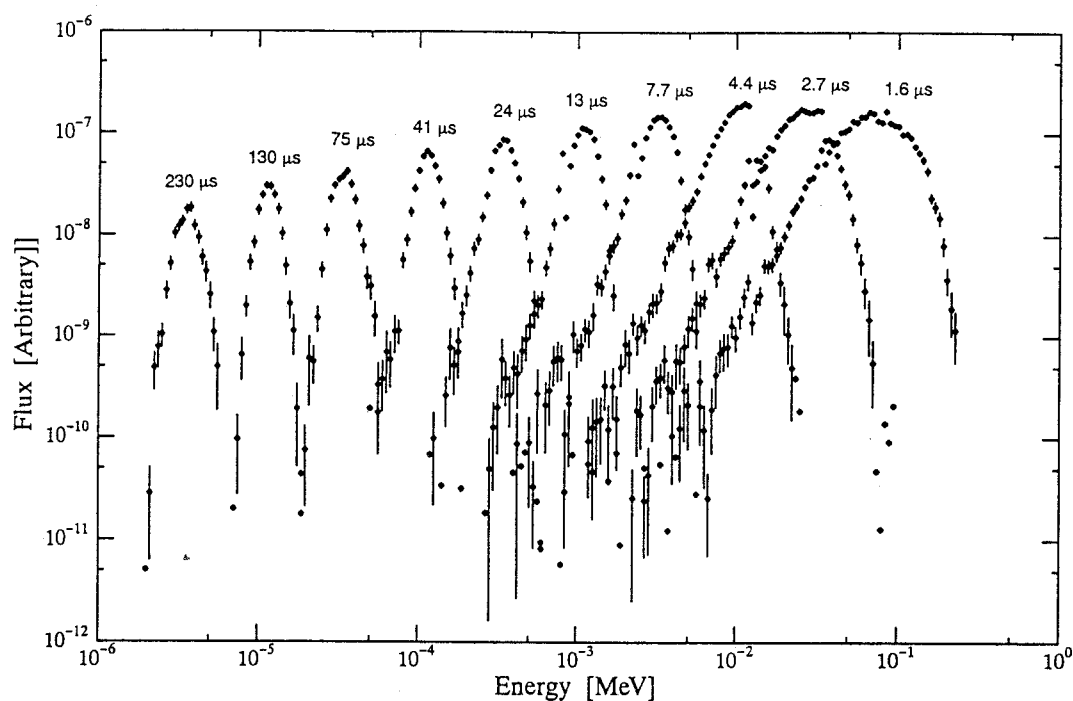


Fig. 6-4. Calculation of time dependent neutron spectra in the Bi hole after the pulsed neutrons were produced in the Ta target.

Table 6-1. Resonance filters and their main resonance energies used in the present measurement

Material	Energy [eV]	Thickness [mm]	Form
In	1.46	0.2	foil
Te	2.33	7.0	powder
Ta	4.28	0.2	foil
Ta	10.4	"	"
Au	4.91	0.05	cylinder
Ag	5.19	0.5	cylinder
Ag	16.3	"	"
Cd	27.5	0.3	cylinder
Mo	44.9	7.0	powder
Co	132	0.3	cylinder
Cu	230	1.0	cylinder
Cu	579	"	"
Mn	336	7.0	powder

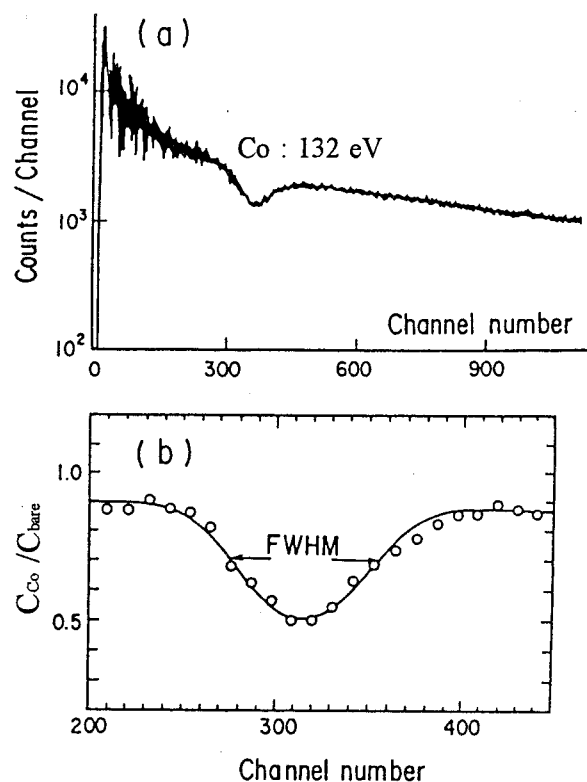


Fig. 6-5. An example of energy resolution measurement by neutron transmission. (a) Neutron time spectrum measured with a cobalt filter. (b) Neutron transmission spectrum of cobalt.

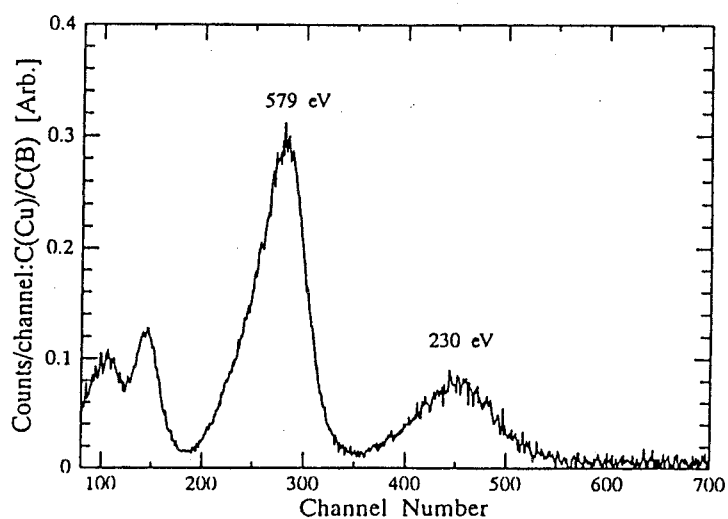


Fig. 6-6. An example of energy resolution measurement by resonance capture gamma-rays of copper.

Table 6-2. Nuclear reaction, half life, gamma-ray energy and its intensity
used for the present data processing.

No.	Reaction	Half life ^a	Gamma-ray ^a energy [MeV]	Gamma-ray ^a intensity [%]
1	$^{197}\text{Au}(n,\gamma)^{198}\text{Au}$	2.694 d	0.412	95.5
2	$^{55}\text{Mn}(n,\gamma)^{56}\text{Mn}$	2.579 h	0.847	98.93
3	$^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$	5.271 y	1.173	99.90
4	$^{186}\text{W}(n,\gamma)^{187}\text{W}$	23.85 h	0.686	29.3
5	$^{24}\text{Mg}(n,p)^{24}\text{Na}$	14.66 h	1.369	100.0
6	$^{27}\text{Al}(n,p)^{27}\text{Mg}$	9.462 m	0.844	73.0
7	$^{27}\text{Al}(n,\alpha)^{24}\text{Na}$	14.66 h	1.369	100.0
8	$^{46}\text{Ti}(n,p)^{46}\text{Sc}$	83.83 d	0.889	99.98
9	$^{47}\text{Ti}(n,p)^{47}\text{Sc}$	3.341 d	0.159	68.2
10	$^{48}\text{Ti}(n,p)^{48}\text{Sc}$	1.821 d	0.984	100.0
11	$^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$	70.92 d	0.811	99.53
12	$^{54}\text{Fe}(n,p)^{54}\text{Mn}$	312.2 d	0.835	99.98
13	$^{64}\text{Zn}(n,p)^{64}\text{Cu}$	12.70 h	0.511	35.8
14	$^{115}\text{In}(n,n')^{115\text{m}}\text{In}$	4.486 h	0.336	45.8

^aThe nuclear data were taken from Ref /31/.

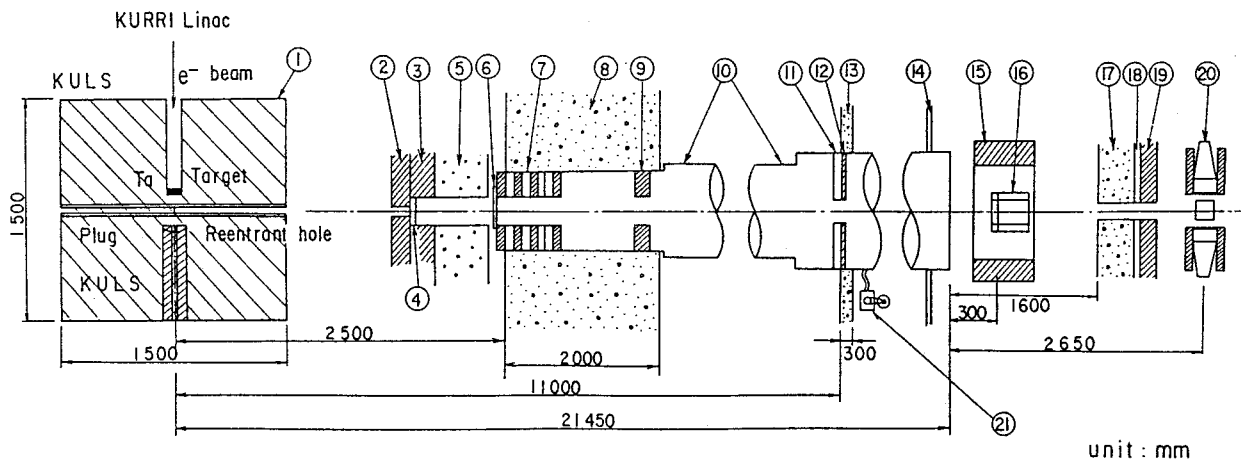


Fig. 6-7. Experimental arrangement for the linac TOF method. (1)KULS, (2)Pb collimator, (3)Pb shield, (4)U-filter, (5)Heavy concrete, (6)Cd-filter, (7) Pb+B₄C collimator, (8)Concrete wall, (9)Pb collimator, (10)Flight tube, (11) B₄C collimator, (12)Pb collimator, (13)Concrete wall, (14)Wall of measuring house, (15)Detector shield of Pb, (16)⁶Li glass detectors, (17)Concrete shield, (18)Cd shield, (19)Pb shield, (20)¹⁰B-vaseline-plug NaI(Tl) detectors, (21) Rotary pump.

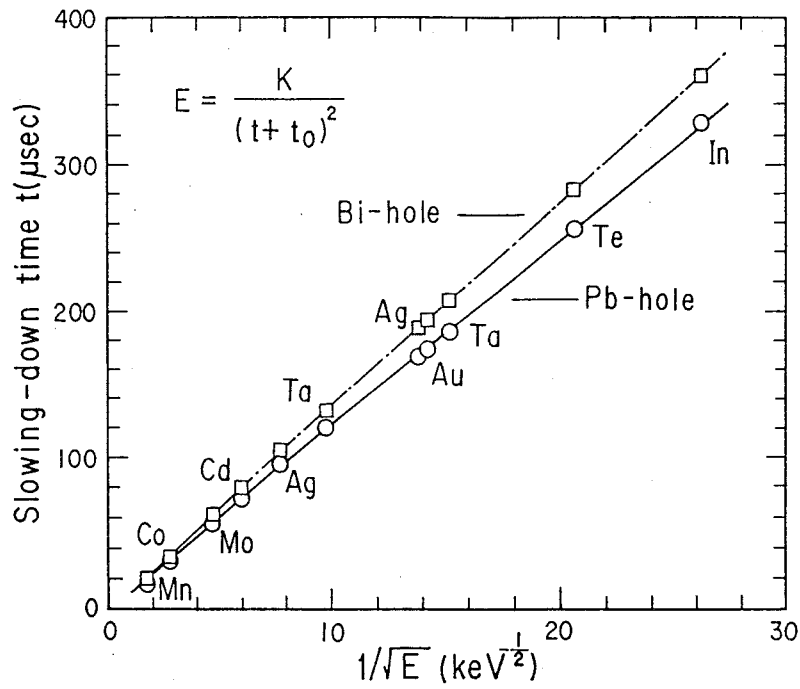


Fig. 6-8. Relation between neutron slowing-down time and mean energy in Bi and Pb holes of the KULS.

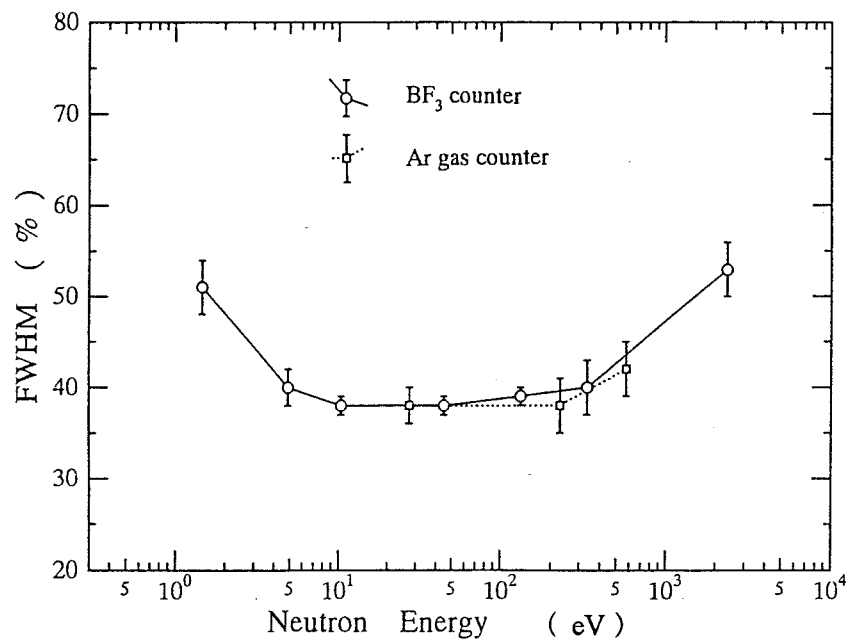


Fig. 6-9. Energy resolution measured by resonance filters in Bi hole of the KULS.

—○— neutron transmission method using the BF_3 counter
 ---□--- capture gamma-ray measurement using the Ar gas counter

Table 6-3. Energy resolution [%] in Bi and Pb holes of the KULS

Measurements				Calculations		
Energy	BF ₃ counter	Ar gas counter		Energy	MCNP code	
[eV]	Bi hole	Bi hole	Pb hole	[eV]	Bi hole	Pb hole
1.46	51±3			3.02		35.7
4.9	40±2			3.56	37.4	
10.4	38±1			10.0		28.5
27.5		38±2	37±2	11.6	31.6	
44.9	38±1			29.8		28.2
132	39±2			33.8	35.7	
230		38±3	40±3	99.1		29.8
336	40±3			113	34.5	
579		42±3	42±4	298		33.7
2370	53±3			339	38.3	
				990		38.1
				1091	43.2	
				2988		50.3
				3208	51.8	

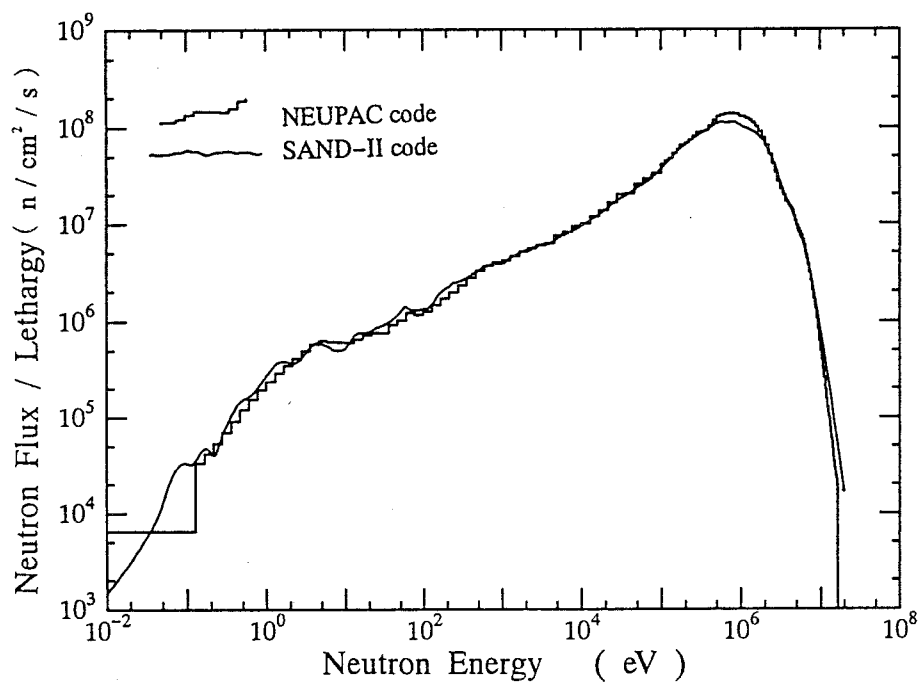


Fig. 6-10. Neutron spectra obtained by the activation data analysis.

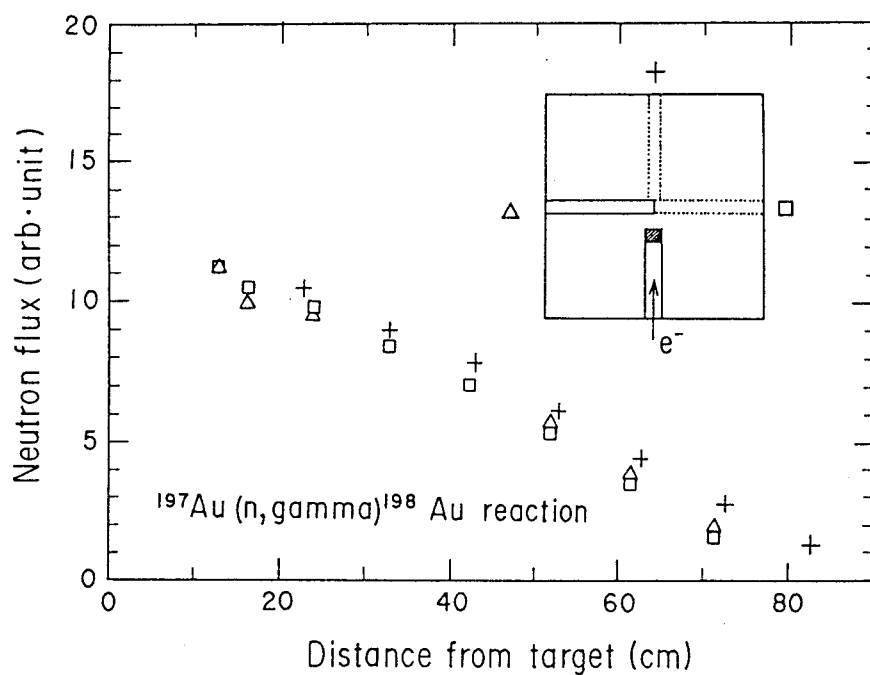


Fig.6-11. Spatial distribution of epi-thermal neutrons measured by the $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ reaction in the KULS.

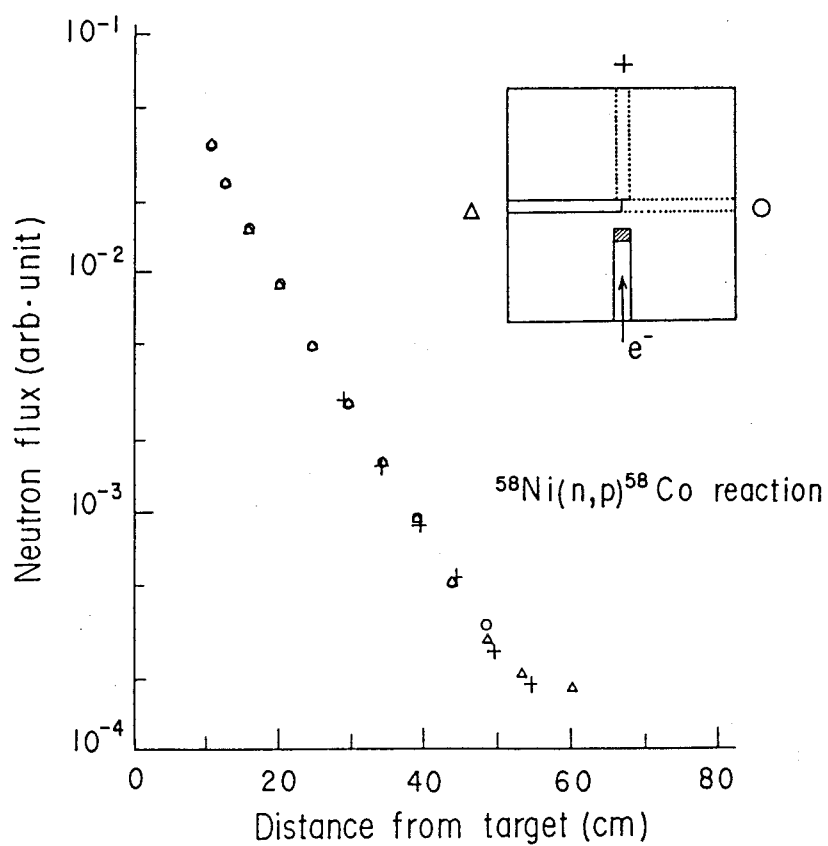


Fig. 6-12. Spatial distribution of fast neutrons measured by the $^{58}\text{Ni}(n, p)^{58}\text{Co}$ reaction in the KULS.

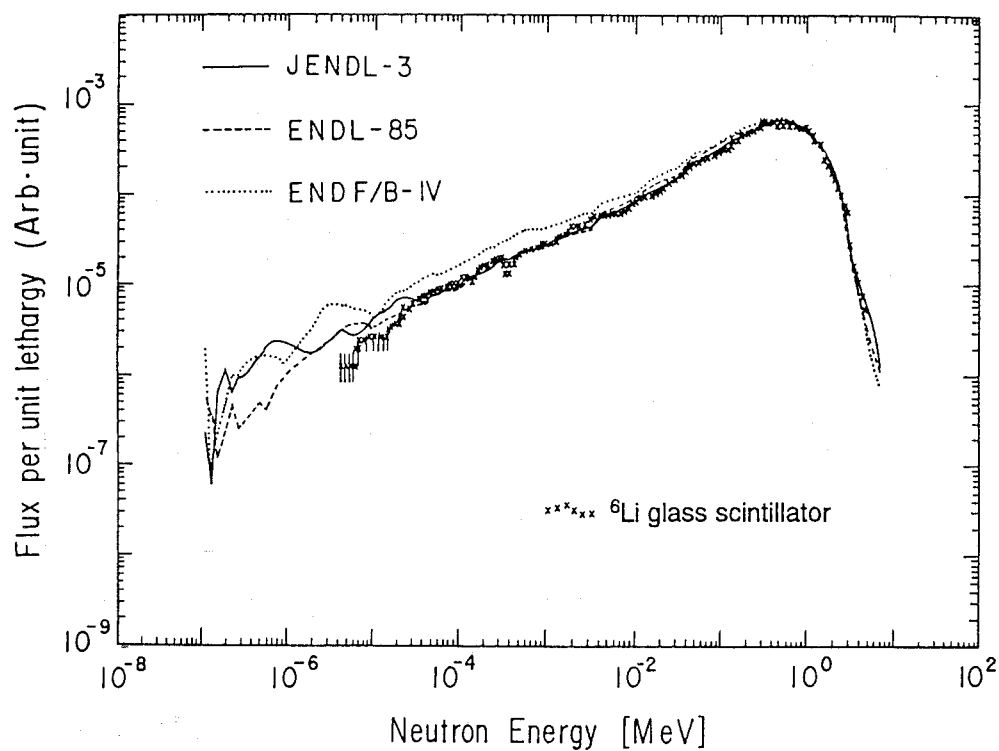


Fig. 6-13. Neutron spectra measured with ^6Li glass scintillators and calculated with the MCNP code for the Ta photoneutron source.

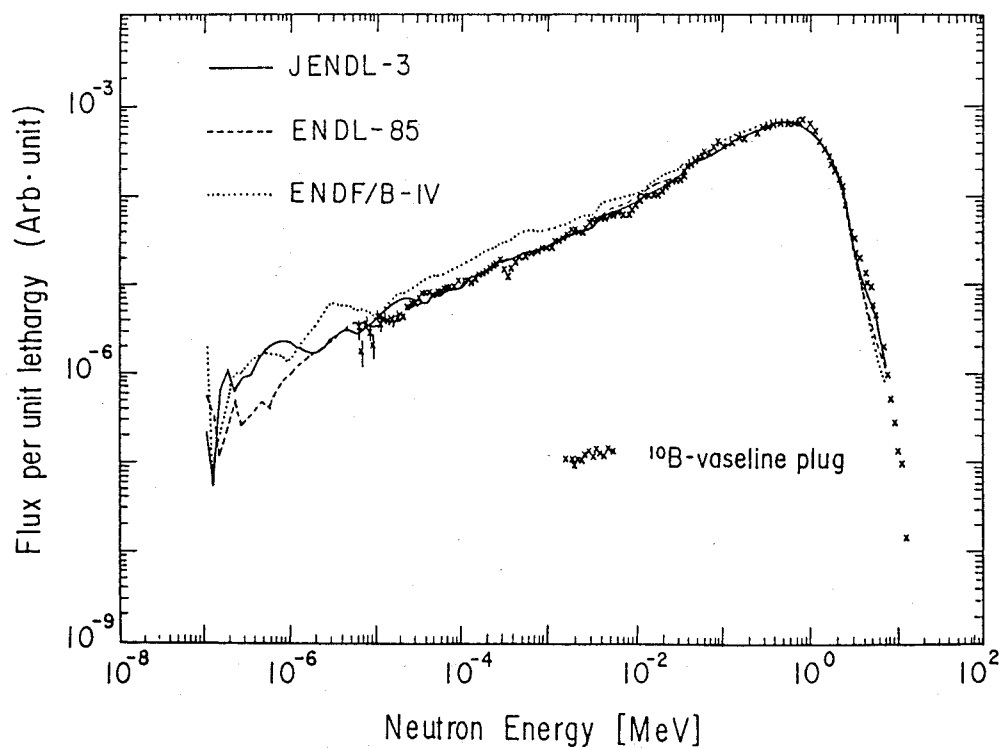


Fig. 6-14. Neutron spectra measured with ^{10}B -vaseline-plug NaI(Tl) detectors and calculated with the MCNP code for the Ta photoneutron source.

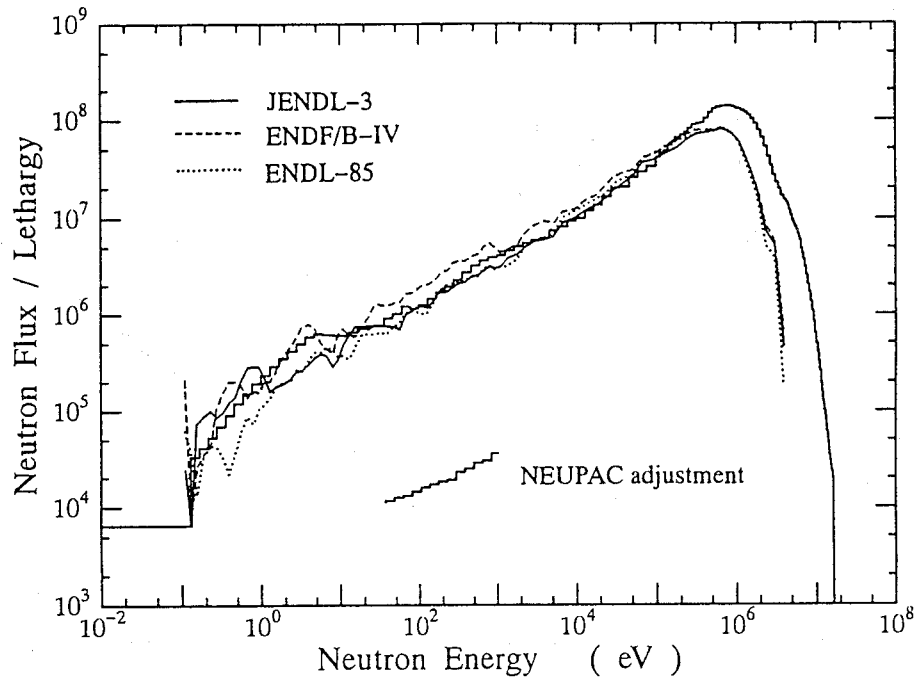


Fig. 6-15. Comparison of neutron flux spectra analyzed by the NEUPAC code and calculated by the MCNP code.

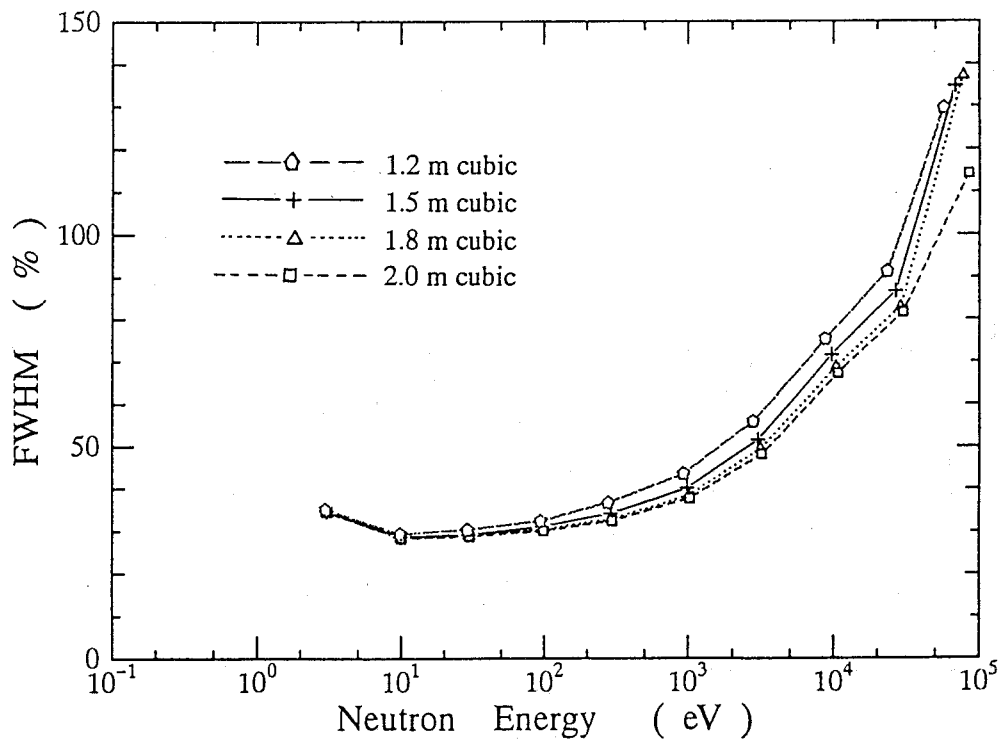


Fig. 6-16. Comparison of the calculated FWHM with different sizes of lead slowing-down spectrometers.

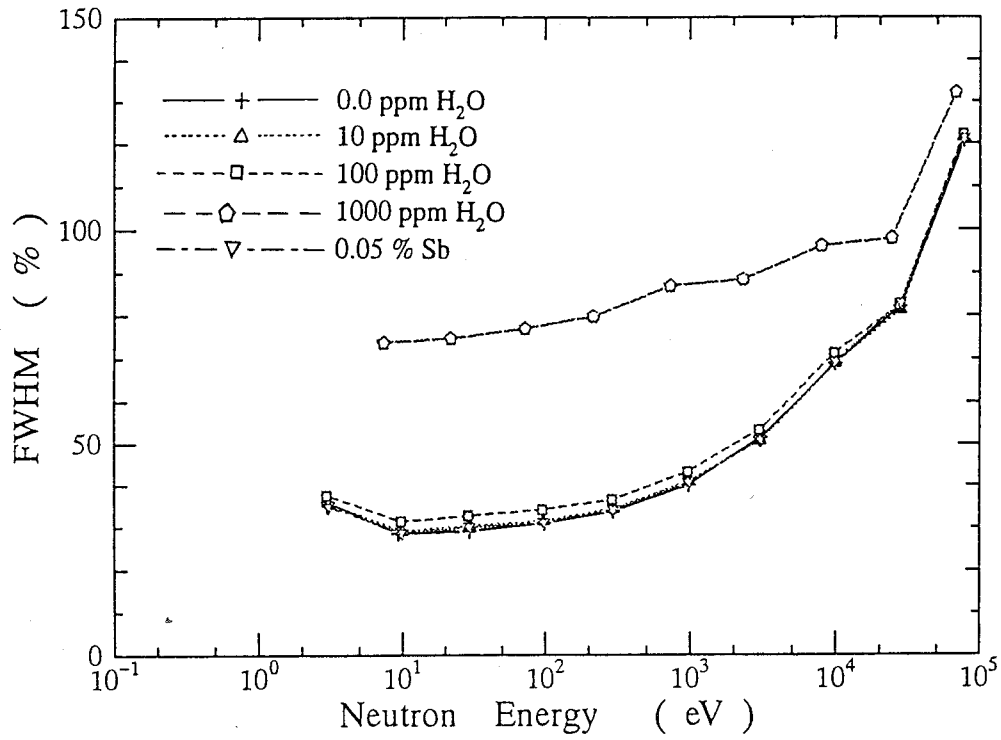


Fig. 6-17. Comparison of the calculated FWHM with Sb and H₂O impurities in the KULS.

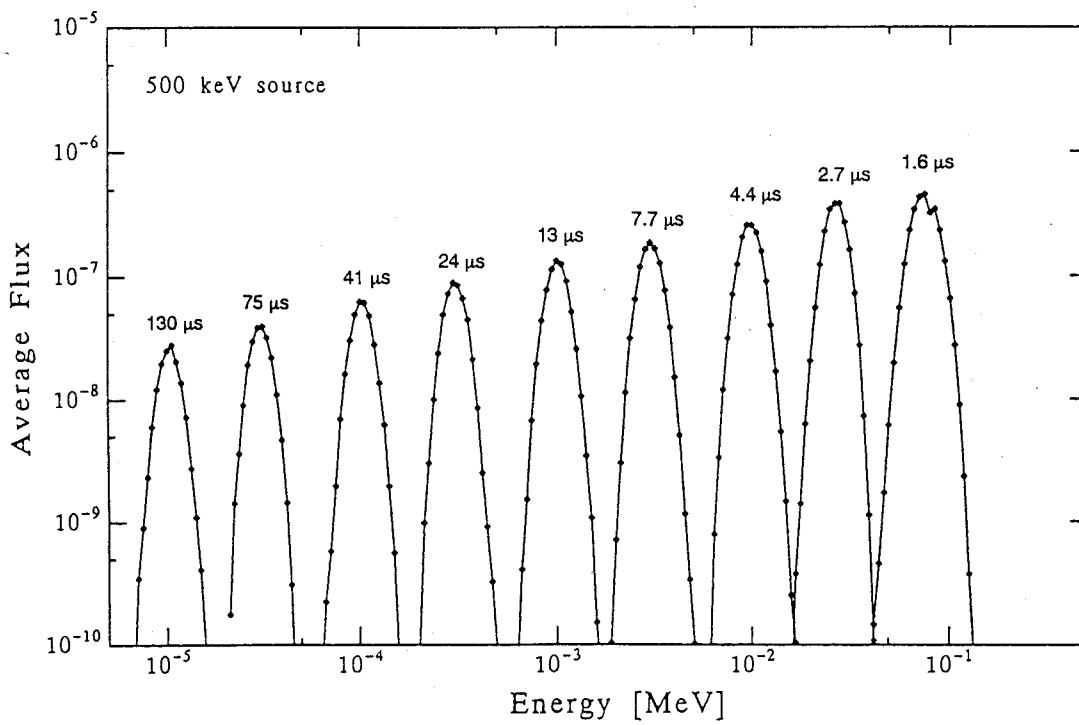


Fig. 6-18. Calculation of time dependent neutron spectra in the KULS driven by 500 keV neutrons.

第7章 鉛減速スペクトロメータを用いた 0.1 eV ～ 10 keV 領域及び標準熱中性子場にお ける ^{241}Am 核分裂断面積の測定

第7章 鉛減速スペクトロメータを用いた 0.1eV ~ 10keV 領域及び 標準熱中性子場における ^{241}Am 核分裂断面積の測定⁽¹⁾

第1節 緒言

アメリシウム-241 (^{241}Am)は、マイナーアクチニド(MA)の代表的な核種のひとつであり、原子力発電所の使用済み燃料中に比較的多量に生成蓄積され、高レベルアルファ放射性の放射性廃棄物の主要成分である。従って ^{241}Am の中性子断面積データは、核燃料サイクル上重要であるが、さらに混合酸化物燃料など、プルトニウムを用いる原子炉の設計や使用済み燃料の再処理システムの設計にとってより重要となる。さらに、 ^{241}Am の核分裂断面積は放射性廃棄物の消滅処理処分の見地からも、その核変換に関する基礎的核データとして強い関心が持たれている/2~6/。

^{241}Am の核分裂断面積はしきい反応の形をとり、500 keV付近で急上昇し、1 MeVを超えたところで約 2 bに至っているが、 ^{238}U や ^{232}Th のそれとは違い、しきい値以下の中速、共鳴及び熱エネルギー領域においてもかなり大きな核分裂反応が観測されている。熱中性子炉においては、低エネルギー領域で中性子束が高いため、この領域の中性子断面積が小さくても反応率は高くなるので、しきい値以下の $^{241}\text{Am}(n, f)$ 反応断面積は重要である。これまでのところ、この反応の断面積の測定例は必ずしも十分とはいえず、とくにしきい値以下(300 keV以下)のデータ間には未だ大きな不一致が存在している/7~13/。最近の2つの評価済みデータ ENDF/B-VI/14/ と JENDL-3.2 /15/ は、飛行時間分析(TOF)法により0.02 eV~20 MeVの広いエネルギー領域において測定を行った Dabbs等の実験値/7/を主に採用している。しかし、Dabbs等より以前に低エネルギーの限られた領域においてこの断面積を測定している Leonard等/8/、Bowman等/9/、Gerasimov/10/、Seeger等/11/、Derrien等/12/、及びGayther等/13/のデータはこれら評価済みデー

タと著しい差異を示しているところがある。 ^{241}Am の熱中性子核分裂断面積は、それぞれの評価済データ間においてほぼよい一致を示しているが/14~17/、実験データについては殆どが1950~1970年代に得られたものであり、2.8~3.2 bの範囲の値を示している/18~23/。

^{241}Am の核分裂断面積測定の難しさは、比較的短い半減期(432年)のアルファ崩壊による強いアルファ線またはそのパイルアップによる妨害と、1~300 keVのエネルギー領域においては断面積の値が 0.1 b以下と小さいことにある。従って、このような断面積測定において十分な信号／雑音比を得るためには、強力な中性子源を必要とする。鉛減速スペクトロメータはエネルギー分解能（半値幅）が30~35 % とよくないが、通常の飛行時間分析法（5 m飛行路による場合）に比べて数千から1万倍も中性子束が高いことから、このような種類の断面積測定には強力なスペクトロメータとしてしばしば用いられている/24-26/。

超ウラン元素の核分裂断面積測定における別の問題は、純粋な実験試料を入手することが必ずしも容易ではないことである。しかしながら、高純度試料の利用は中性子断面積データの測定にとって最も重要かつ不可欠な問題である。以前、 ^{241}Am の核分裂断面積測定結果が評価値より大きな値を示した/28/。そこでその実験に使用した市販の ^{241}Am 試料について注目し、そのアルファ線スペクトルを注意深く測定した結果、得られていた大きな断面積は試料中に存在するプルトニウム不純物（~0.3 %）に起因していたことが分かった/29/。

本研究においては、超ウラン元素の不純物を取り除くために、まず陰イオン交換分離法により ^{241}Am 試料の精製を行った後ステンレス板上に電着し、これと ^{235}U 標準試料の電着膜を背中合わせ型に封入した核分裂電離箱（BTBチェンバー）/30/として実験に用いた。BTBチェンバーと京都大学原子炉実験所(KURRI)の46 MeV電子線形加速器(ライナック)を組み合わせた鉛減速スペクトロメータ(KULS)/31/を用いて $^{241}\text{Am}(n, f)$ 反応断面積を0.1 eV~10 keVのエネルギー領域において測定した。この場合、 $^{241}\text{Am}(n, f)$ 反応断面積の絶対値は $^{235}\text{U}(n, f)$ 反応の標準断面積を用いて求めた。 ^{241}Am と ^{235}U 共鳴の相互干渉によって測定データに乱れが生じることを避けるため、1 keV以下では BF_3 カウンターを用いて1/vエネルギー依存性を

もつ $^{10}\text{B}(\text{n}, \alpha)$ 反応による $^{241}\text{Am}(\text{n}, \text{f})$ 反応断面積の相対測定を行い、その結果を200 eV～1 keV領域におけるBTBチェンバーの測定値に規格化した。最後に、ENDF/B-VI 及び JENDL-3.2 の評価済核データ、並びに他の実験データについて、本実験によって得られた結果と比較検討を行った。

$^{241}\text{Am}(\text{n}, \text{f})$ 反応の熱中性子断面積もまた、前に述べたBTBチェンバーを用いて標準的な熱中性子スペクトル場を持つ京都大学研究用原子炉 (KUR) の重水熱中性子照射設備/32/において測定し、評価済核データ及び従来の実験データと本実験値を比較検討した。

第2節 鉛減速スペクトロメータ (KULS) による実験方法

2-1 鉛減速スペクトロメータ (KULS)

本実験に使用した鉛減速スペクトロメータ (KULS)/31/は第6章に述べたように、高純度鉛ブロック (99.9%) を約1600個積み重ねたもので、一辺が1.5 mからなる立方体形で総重量は約40トンである。KULSのほぼ中央部に置いたタンタルターゲットにライナックからの加速電子ビームを当てることによりパルス状高速中性子を発生させた。KULSには11個所の実験孔 (断面10 x 10 cm²、奥行き45 cm～55cm) があり、そのうちの1つはビスマス層で遮蔽された構造である。ビスマス層はタンタルターゲットや鉛の中性子捕獲による高エネルギー即発ガンマ線 (6～7 MeV) を遮蔽するために設けられており、光核分裂反応のバックグラウンドを低減するために有効とされる/33/。

本スペクトロメータに関する構造、諸特性の詳細については、第6章において述べている。

2-2 ^{241}Am 及び ^{235}U 試料

2-2-1 試料の製作

測定に用いた ^{241}Am 試料はIAEAから入手した酸化物試料である。陰イオン交換分離法により ^{241}Am 試料を精製し、これに含まれるウラン、ネプツニウム、プル

トニウム、及びキュリウムの不純物を除去した/34/。精製された試料の電着は、白金攪拌棒を陽極に、ステンレス電着板(直径 28 mm、厚さ0.2 mm)を陰極とし、イソプロピルアルコールに約0.2 N塩酸溶液を混合した電解液に通電する方法によった。使用した電着容器の構造をFig. 7-1に示す。電着後、ステンレス板(電着部の直径 20 mm)をイソプロピルアルコールで洗浄して乾燥させた後、試料が電着板から剥離するのを防止するためガスバーナで赤熱し、酸化処理を施している/35/。また、中性子束モニターとして用いる²³⁵U高濃縮ウラン(99.91%)の薄膜も同様の方法で製作した。²⁴¹Am試料の製作は日本原子力研究所アイソトープ生産研究室において、²³⁵U試料の製作は京都大学原子炉実験所ホットラボラトリーにおいて行われた。

2-2-2 試料中の ²⁴¹Am 及び ²³⁵U 原子数の定量

ステンレス板上に電着した試料の原子数は、表面障壁型シリコン検出器によるアルファ線スペクトル測定及び高純度ゲルマニウム検出器によるガンマ線スペクトル測定の2種類の方法により定量した。

Fig. 7-2にアルファ線スペクトル測定の概要を示す。チェンバー内はロータリーポンプにより高性能フィルターを通して真空(10⁻² torr以下)に保たれている。Fig. 7-3及びFig. 7-4は、²⁴¹Am 及び ²³⁵U 電着試料から放出されたアルファ線スペクトルの測定例である。アルファ線スペクトルの計数データ、アルファ線放出強度、アルファ線検出効率、及び半減期から、それぞれの原子数を算出した。その結果をTable 7-1に示す。この際、アルファ線の検出効率は、電着試料が表面障壁型シリコン検出器に張る立体角のみに依存していると仮定し、次のような近似式を用いて計算した/36/。

$$\Omega = \frac{\omega^2}{4} \left[1 - \frac{3}{4}(\psi^2 + \omega) + \frac{15}{8} \left(\frac{\psi^4 + \omega^4}{3} + \psi^2 \omega^2 \right) - \frac{35}{16} \left\{ \frac{\psi^6 + \omega^6}{4} + \frac{3}{2} \psi^2 \omega^2 (\psi^2 + \omega^2) \right\} \right]$$

$$\psi = \frac{R_s}{d}, \quad \omega = \frac{R_d}{d}$$

ここで、 R_s 、 R_d はそれぞれ試料及び検出器の半径を、 d は試料と検出器間の距離を表す。計算に用いたパラメータと検出効率の計算結果をTable 7-2 に示す。 ^{241}Am 及び ^{235}U の半減期、アルファ線放出強度は、文献の値を引用した/37/。

ガンマ線スペクトルの測定は、高純度ゲルマニウム検出器(HPGe)を用いて行った。 ^{241}Am からの59.5 keV、 ^{235}U からの185.7 keVガンマ線を測定することによりそれぞれの原子数を決定した。測定に使用したHPGeのエネルギー及び検出効率の較正は、混合標準線源、 ^{241}Am 標準線源を用いて行った。ガンマ線スペクトル測定の結果から求めた ^{241}Am 及び ^{235}U 試料の原子数をアルファ線測定による結果と共にTable 7-1 に示す。両測定法による原子数の測定結果は誤差の範囲内で一致していることが分かる。以後の解析ではこれらの加重平均値を使用している。

2-2-3 電着膜の均一性

前述のように、 ^{241}Am 及び ^{235}U 試料は電着法により製作された。電着法は蒸着法に比べると、必要とする試料の量が少なくすむ、装置が簡便であるといった利点があるものの、試料が均一に付きにくいという欠点もあり、使用にあたっては注意が必要である。そこで、出来上がった電着膜の均一性を調べるため、固体飛跡検出器 CR-39 を用いて次のような実験を行った。試料表面から 0.5 mm の位置に CR-39 プラスチック板を対面させて置き、アルファ線の飛跡分布を測定した。CR-39の2.4 MeV～4.7 MeVアルファ線に対する臨界角度が約20度であるため/38/、約1.4 mmの分解能で試料の不均一性を知ることができる。 ^{235}U 試料に対して2時間、 ^{241}Am 試料に対して1秒間露出後、KOH水溶液（濃度30%、温度90℃）で15分間エッチングし、出来たエッチピットの数光学顕微鏡で観測した。電着試料の均一度は、縦横 3 mm おきに、一辺が 0.5 mm の正方形内にあるエッチピット数を測定することにより求めた。測定の結果、両試料とも単位面積あたりに存在するピット数に多いところと少ないところで2～3倍程度の不均一性が観測された。しかし、電着膜の厚み(^{241}Am : $2.2 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ 、 ^{235}U : $41 \mu\text{g}/\text{cm}^2$)から考えて、この程度の不均一性は、核分裂片の通過に殆ど影響を与えることはない。

2-3 実験に用いた検出器

2-3-1 核分裂電離箱

測定試料の核分裂率測定には核分裂電離箱を使用した。今回の実験に使用した核分裂電離箱は、Fig. 7-5に示したように、2つの核分裂計数部が背中合わせとなる構造をしていることから、back-to-back (BTB) 型核分裂電離箱 (BTBチェンバー) と呼ばれている/30/。BTBチェンバーは、測定試料 (^{241}Am) と中性子束モニター用試料 (^{235}U) が殆ど同じ位置で照射できるため、実験における系統的誤差を小さくできるという利点がある。

実験に使用したBTBチェンバーはアルミニウム製、外径40 mm、長さ39 mmの円筒形状で容器の厚さは側面1.5 mm、底面2 mm である。電極は、陽極直径が28 mm、電極間距離8 mmの平行平板構造である。また、容器には信号取り出し用コネクタ、ガス封入用銅製パイプが取り付けられている。

試料を電着したステンレス製陰極板を電離箱内にセットし、真空ポンプで電離箱内部を真空引きした後、電離ガスとして、アルゴン97%、窒素 3%、の混合ガスを1気圧で封入している。

BTBチェンバーの印加電圧は400Vで、これをKULSのビスマス実験孔に挿入して実験した。 ^{241}Am の核分裂信号パルス波高分布の測定例をFig. 7-6 に示す。これを見ると核分裂信号はノイズやアルファ線による信号とよく分離されていることが分かる。

2-3-2 BF_3 カウンター

本測定では、上述の BTBチェンバーを用いて ^{235}U 核分裂率に対する ^{241}Am 核分裂率の比を測定し、その測定結果を $^{235}\text{U}(n, f)$ 反応の標準断面積に規格化することにより絶対値を得ている。しかし、約1 eVから数100 eVの共鳴領域では、 ^{241}Am 及び ^{235}U とともに共鳴を持つため、両核分裂率の比測定では、両者の共鳴干渉によって測定結果が乱される恐れがある。そこで、1 keV 以下の領域では $^{235}\text{U}(n, f)$ 反応の代わりに $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 反応を利用することにした。 $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 反応断面積は、この領域に共鳴が無く、なだらかな $1/v$ 特性を持っているので共鳴による影

響を受けずに $^{241}\text{Am}(n, f)$ 反応断面積の測定ができる。この場合は ^{241}Am 核分裂断面積の相対値(形状)を測定するものであり、その絶対値については BTBチェンバーによる200eV~1keV領域での測定結果に規格化して求めた。 $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 反応の反応率は、ビスマス実験孔内に入れた BF_3 カウンターにより測定した。 BF_3 カウンターは直径12 mm、有効長50 mm、ガス圧 1 気圧の小型計数管で、動作電圧1100 Vで使用した。

2-4 核分裂比の測定

^{241}Am の核分裂断面積測定においては、 ^{241}Am と ^{235}U 試料を封入したBTBチェンバーを鉛減速スペクトロメータ KULS のビスマス実験孔に挿入して、 ^{241}Am と ^{235}U の核分裂比測定を行った。今回の実験に使用した KULS 用の光中性子源は、金属タンタル板を層状に重ね、その間に圧縮空気を流す冷却方式のターゲットである。鉛の融点は約300℃であるため、ターゲットの表面4箇所に熱電対を取り付けて、その表面温度が300℃を越えないように、ライナックの運転条件を設定した。代表的なライナック運転条件は以下の通りである。

電子エネルギー : 約31 MeV

電流パルス幅 : 22 ns

ピーク電流 : 約0.8 A

パルスの繰り返し : 150 Hz

このような条件下で数時間から10時間程度の実験をくり返しながら合計約120時間の測定を行った後、BTBチェンバー内の ^{241}Am と ^{235}U 試料を入れ替えてさらに130 時間前後の測定を行った。実験中のパルス波高分布の変化に注意を払い、約10時間毎に信号弁別レベルの確認を行い、必要な場合には弁別レベルを再調整した。また、約40時間毎にガスの入れ替えを行った。

2-5 測定回路系

測定回路系のブロック図をFig. 7-7に示す。図に示したように、 ^{241}Am 及び ^{235}U の核分裂測定用に同一の測定回路系を2系統用意し、それぞれの信号は前置増幅

器 (Preamp.) と主増幅器 (Amp.) を通った後、一つはエネルギー信号として波高分析器へ、もう一つは時間信号としてタイミングシングルチャンネル波高弁別器 (Timing SCA) を経て時間分析器 (Time Digitizer) へ入力した。時間分析器はライナックの電子バーストで初期化されるようにした。また、中性子発生時の強烈なガンマフラッシュにより測定が妨げられるのを避けるため、ディジタル遅延ゲート発生器 (Digital delay & Gate) を用いて、あらかじめ設定された時間ゲート外の信号は測定にかからないようにした。BF₃ カウンターを用いた測定の場合もほぼ同様の測定系を用いた。

第3節 KULSによる実験データの解析

3-1 核分裂断面積の導出

KULS の減速時間 $t(\mu s)$ に対応した核分裂の計数値は、第6章に示したように $E=K/(t+t_0)^2$ の関係式を用いてエネルギー $E(\text{keV})$ における計数値に変換できる。ここで、 K はKULSの減速定数、 t_0 はゼロ時間の補正項である。²⁴¹Am及び²³⁵Uの核分裂計数値を用いて²⁴¹Am(n, f)反応のエネルギー依存断面積は次式で与えられる。

$$\sigma_{\text{Am}}(E) = \frac{C_{\text{Am}}(E) \cdot N_{\text{U}}}{C_{\text{U}}(E) \cdot N_{\text{Am}}} \cdot \sigma_{\text{U}}(E)$$

ここで、

$C_{\text{Am}}(E)$: エネルギー $E \sim E + \Delta E$ における ²⁴¹Am の核分裂計数値、

$C_{\text{U}}(E)$: エネルギー $E \sim E + \Delta E$ における ²³⁵U の核分裂計数値、

N_{U} : ²³⁵U 電着膜中の ²³⁵U 原子数、

N_{Am} : ²⁴¹Am 電着膜中の ²⁴¹Am 原子数、

$\sigma_{\text{U}}(E)$: ²³⁵U のエネルギー依存標準核分裂断面積。

ここで、 $\sigma_U(E)$ は ENDF/B-VI から引用した $^{235}\text{U}(n, f)$ 反応の標準断面積データを K U L S のエネルギー分解能でなました値を用いた。

実験で得られた ^{241}Am 及び ^{235}U の核分裂計数値を用いて核分裂断面積を算出する際には、次項で述べる補正を考慮している。

3-2 核分裂断面積測定の補正

3-2-1 混入不純物

本実験のような核分裂反応断面積測定においては、高純度試料が不可欠である。実験試料中に不純物が混入している場合には、不純物による計数値への寄与を正確に評価し補正する必要がある。

本実験に使用した ^{241}Am 試料は、まず陰イオン交換分離法によって精製した後、アルファ線及びガンマ線スペクトル測定を注意深く行い、 ^{241}Am 試料中には不純物が観測されないことを確認した。一方、中性子束モニタ用として使用した ^{235}U 試料の場合は 0.043 % の ^{234}U が含まれているが、 ^{234}U の核分裂断面積は小さく、混入量から判断しても $^{235}\text{U}(n, f)$ 反応率測定への影響は無視できる。

3-2-2 光核分裂反応

鉛は中性子捕獲反応を起こすと、高エネルギー即発ガンマ線 (6~7 MeV) を放出する。この場合、核分裂性物質では (γ, f) 反応が起こり得るので、光核分裂反応による (n, f) 反応への影響を避けるための実験孔として、K U L S には厚さ 10~15 cm のビスマス層で覆われた実験孔が設けられている。ビスマスによる中性子捕獲ガンマ線のエネルギーは約 4MeV であって、このエネルギーに対する ^{241}Am 及び ^{235}U の光核分裂断面積は共に 10^{-4} b 以下と非常に小さい/39, 40/。従って、本実験ではビスマス実験孔を使用することによって、 $^{241}\text{Am}(n, f)$ 反応断面積測定に対する光核分裂反応の影響は無視できるものとした。

3-2-3 バックグラウンド

核分裂事象によって得られる核分裂電離箱からのパルス波高は十分大きいので、パルス波高の低い雑音や測定試料からのアルファ線によるバックグラウンドは波高弁別によって容易に除去することが出来る。弁別レベル以上のバックグラウンドパルスの測定を目的として、BTBチェンバーの一方に ^{235}U を、もう一方には何も試料を取り付けずに測定を行った。約30時間測定を行った結果、約0.2~0.4%程度のバックグラウンドの存在が認められたが、これは本実験においては十分無視できる量である。

3-2-4 検出器内散乱中性子

中性子は、電離箱の構造材と相互作用を起こすことなく直接電離箱内の電着試料に到達する場合と、構造材によって散乱された後到達する場合がある。このような検出器内散乱中性子による測定結果への影響を調べるため、連続エネルギーモンテカルロコードMCNP/41/を用いて計算を行った。電離箱はFig. 7-5に示したように、直径40 mm、長さ39 mm、厚さ2 mmのアルミニウム製 BTBチェンバーである。中性子は、BTBチェンバーの周りから等方的に入射すると仮定した。また、BF₃カウンターは BTBチェンバーとその構造に違いがあるため、BTBチェンバーの構造材による中性子スペクトルの歪みを補正する必要がある。計算の結果、1~10 eVのエネルギー領域では断面積値を2~6 %小さく、0.3~0.8 eV のエネルギー領域では約7 %大きく補正する必要があった。

3-2-5 核分裂パルスの数え落とし

Fig. 7-6 に見られるように、核分裂電離箱からの信号は雑音やアルファ線によるパルスを含んでいるため、これらの信号を除去し、核分裂信号のみを取り出すために波高弁別が必要になる。この場合、核分裂パルスの内、低い波高のパルス信号が弁別レベルの設定値により計数されない場合が生じる。そこでパルス波高分布において雑音領域のパルス波高分布と核分裂信号域のパルス波高分布が交叉

する谷間の部分をそれぞれ外挿して、この補正量を求めた。雑音部と核分裂パルス信号部の補正量はほぼ相殺するが、 ^{241}Am 及び ^{235}U のパルス波高分布から、 ^{241}Am の核分裂に対して約3.8%、 ^{235}U に対して約1.3%の補正を必要とした。

3-2-6 核分裂片の非等方性

今回の実験では、入射中性子エネルギーが10 keV以下の低い領域であるため、入射中性子によって複合核に運動量が持ち込まれたとしても核分裂片の角度分布に偏りが生じることは殆どなく、本実験における核分裂断面積の測定に影響はないと考えられる。

3-2-7 電着試料中での核分裂片の損失

電着膜の厚さを $t \text{ mg/cm}^2$ とすると、膜を通過する際の核分裂片の損失率は $t/2R$ で表すことができる/30/。ここで $R \text{ mg/cm}^2$ は核分裂片の電着膜での平均飛程である。 UO_2 内での核分裂片の飛程は Grundlが求めている/42/。それによると、 UO_2 内での核分裂片の平均飛程は 8.29 mg/cm^2 である。この値を用いて、今回の実験に使用した ^{235}U ($41 \mu\text{g/cm}^2$) 試料中での核分裂片の損失率を計算すると0.25%となる。 ^{241}Am ($2.2 \mu\text{g/cm}^2$) 試料についても近似的に UO_2 の平均飛程と同じ値であると仮定して計算すると、損失率は0.01%となる。

第4節 熱中性子核分裂断面積の測定

4-1 KUR重水熱中性子照射設備

^{241}Am の熱中性子核分裂断面積の測定は、京都大学研究用原子炉 (KUR) に設置されている重水熱中性子照射設備 (以後「重水設備」と略す) を用いて測定した。KUR重水設備の概略をFig. 7-8に示す。重水タンクには約2トンの重水が入っていて、その厚さが約1.4 m もあるため、高速中性子はもちろん、熱外中性子の成分も非常に少ない (カドミウム比が約5000)。そのスペクトル形状は中性子温度が約60℃のほぼ純粋な Maxwell分布を示すことが確認されており、優れた標準熱中

性子スペクトル場として広く利用されている/43/。

KURの重水設備には、照射室外部から重水タンクの正面方向に向けてレールが敷かれており、KURの連続運転中に照射台に取り付けた試料を外部から操作して照射位置まで移動、照射できるようになっている。

4-2 実験方法

実験は、KULSの実験に使用した ^{241}Am 及び ^{235}U 電着膜を封入したBTBチェンバーを用いて行った。KURの定格出力5000 kW 運転中、照射筒先端（熱中性子束：約 $2 \times 10^9 \text{ n/cm}^2/\text{s}$ ）より約2 mの位置において約10時間の照射実験を行った。次に、BTBチェンバーの試料位置の違いによる影響を調べるため ^{241}Am と ^{235}U 試料を入れ替えた照射も行った。BTBチェンバーからの核分裂パルス信号は、Fig. 7-9に示したように、前置増幅器及び主増幅器を経た後、2048チャンネルの波高分析器に記録した。各々の試料に対する核分裂計数は、パルス波高弁別レベル以上の波高分布データを積分することによって得た。

4-3 データ解析

Maxwell分布型の標準熱中性子スペクトル平均断面積は、次式で定義される/44/。

$$\sigma_{\text{th}} = \frac{\sigma(v_0)}{1.128} g(T_n) \left(\frac{T_0}{T_n} \right)^{1/2}$$

ここで、 $v_0 = 2,200 \text{ m/s}$ 、 $T_0 = 293.6 \text{ K}$ 、 $T_n = 60 \text{ }^\circ\text{C}$ は中性子温度、 $g(T_n)$ は Westcott の非 $1/v$ 因子（ g -因子）である。

従って、 $2,200 \text{ m/s}$ に当たる 0.0253 eV での $^{241}\text{Am}(n, f)$ 反応断面積は、 $^{235}\text{U}(n, f)$ 反応の標準熱中性子断面積を使って、次のように与えられる。

$$\sigma_{\text{Am}}(v_0) = \frac{C_{\text{Am}}}{C_{\text{U}}} \frac{N_{\text{U}}}{N_{\text{Am}}} \frac{g_{\text{U}}(T_n)}{g_{\text{Am}}(T_n)} \sigma_{\text{U}}(v_0)$$

ここで、 C_{Am} 、 C_U : ^{241}Am 、 ^{235}U の核分裂計数率、

$g_{Am}(T_n) = 0.996$ 、 $g_U(T_n) = 0.976$: ^{241}Am 、 ^{235}U の g -factor、

$\sigma_U(v_0)$: 0.0253eVにおける $^{235}\text{U}(n, f)$ 反応の標準断面積。

本実験では、 $^{235}\text{U}(n, f)$ 反応の標準熱中性子断面積値としてENDF/B-VIに与えられている586.2 bを引用した。また、Westcottの g -因子についてはMughabghabの文献値より引用した/17/。

第5節 結果及び検討

^{241}Am と ^{235}U 電着膜を背中合わせに組み合わせた BTBチェンバーと KULSを用いて、 $^{241}\text{Am}(n, f)$ 反応断面積を0.1 eV~10 keVのエネルギー領域において測定した。1 keV以下のエネルギー領域では ^{241}Am と ^{235}U の共鳴による相互干渉をさけるため、 $^{235}\text{U}(n, f)$ 反応に代えて $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ 反応に対する相対測定を行い、これを $^{235}\text{U}(n, f)$ 反応による200eV~1 keV領域の絶対値に規格化した。本測定結果をFig. 7-10に示す。この図には、ENDF/B-VI 及び JENDL-3.2 の評価済データを KULSのエネルギー分解能関数でなました結果を測定値と比較して示している。

^{235}U の核分裂電離箱の数え落とし補正量は0.03%以下であり、 ^{241}Am の場合の補正量は無視できる程度であった。その他 ^{241}Am 核分裂断面積の測定において、(1) ^{241}Am 及び ^{235}U 試料中における核分裂片の損失、(2) 核分裂片の角度分布に対する非等方性、及び(3) 光核分裂反応による補正については、先に行った $^{237}\text{Np}(n, f)$ 反応断面積測定/45/の場合と同様、無視できると仮定した。また、 ^{241}Am 試料については注意深く化学精製して作成しており、試料中には問題となる不純物が混入していないことをアルファ線及びガンマ線スペクトル測定によって確認した結果、その影響に対する補正は無視できるものとした。

測定データの統計精度向上のため約0.115レサジー幅で減速時間データを加算している。本測定における誤差要因及びそれぞれの誤差値をTable 7-3にまとめている。核分裂信号のパルス波高分布と雑音の弁別レベル設定値の不確かさに起

因する誤差は、 ^{241}Am の核分裂計数に対して1.9%、 ^{235}U の核分裂計数に対して0.65%であった。検出器系の増幅度変動を考慮して、10～20 時間ごとに弁別レベルの確認を行った。 ^{241}Am 、 ^{235}U 試料中の原子数は、アルファ線及びガンマ線による測定結果の平均値を用いた。Table 7-1 に示したように、ガンマ線測定の結果は実験誤差内でアルファ線測定の結果を支持していることが分かる。標準的な反応断面積として用いた $^{235}\text{U}(n, f)$ 及び $^{10}\text{B}(n, \alpha)$ 反応断面積の誤差は本実験のエネルギー領域において各々 2～4% 及び 2% [$^{10}\text{B}(n, \alpha)$ 反応の $1/v$ 形状からのずれ] である/14, 46/。従って、本実験における $^{241}\text{Am}(n, f)$ 反応断面積測定の全体誤差は4.1～8.6%となる。

評価済核データ ENDF/B-VI 及び JENDL-3.2 にある $^{241}\text{Am}(n, f)$ 反応断面積の概形と絶対値はFig. 7-10から分かるように、本測定値とよく一致している。また、22～140 eVのエネルギー領域を除けば、これらの評価済データどうしもよく一致している。しかし、断面積の形が起伏を示す領域では測定値と評価済データ間にいくつかの違いが見られる。2～4 eVの狭い谷の部分では、両評価済データは本測定値より約30 % 小さい。しかし、もう少し広いエネルギー領域にわたる平均値でみるとその違いは約10 % 程度である。この不一致は KULSのエネルギー分解能に対する取り扱いに何らかの問題が残っているためかも知れない。8 eV 付近の谷に見られる違いもこのような断面積のなまし操作における分解能の問題であろう。評価値と本測定結果を比較すると、JENDL-3.2データは22～140 eVで1.2～2.3倍の範囲で低く見積もっていることが分かる。一方、ENDF/B-VIデータは測定値と全体によく一致している。

過去の実験データについても、KULSのエネルギー分解能でなまし操作を行い、本測定値との比較結果をFig. 7-11に示す。Dabbs等の測定データはENDF/B-VIの評価作業において用いられた1次ソースであり、本測定値と全体によく一致している。Gayther等/13/のデータは55eV以上で本測定値より50～100%大きい。Bowman等/9/、Gerasimov/10/、Derrien等/12/によるデータは、数10 eV以下で本測定値とよく一致しているが、Bowman等は200 eV以上で2倍大きいデータを出している。Leonard等/8/は 2～5 eVで他のデータより大きな値を出している。Seeger

等/11/ は核爆発実験によって断面積測定を行ったが、200 eV以上で本測定値よりかなり大きな値を得ている。

Table 7-4は、本測定で得た ^{241}Am 核分裂断面積の平均値と ENDF/B-VI、JENDL-3.2 及びDabbs等/7/によるデータの平均値を比較して示している。この表を見ると、ENDF/B-VIデータは 0.1~0.89 eV 及び 20~200 eV のエネルギー領域において本測定値の誤差内にあるが、0.89~20 eVで 4.5~7 %大きく、200 eV~10keVで12~15 %小さくなっていることが分かる。JENDL-3.2データは 3.55~10 keVの領域で本実験値より 7~25 %小さい値を示しているが 0.1~3.55 eVではよく一致している。Dabbs等/7/ のデータは、0.89~3.55 eVのエネルギー領域で本測定値より14%大きくなっていることを除けば、両実験誤差の範囲内で本測定値と大略一致している。1 keV以上のエネルギー領域では、評価値や Dabbs等の測定値に比べ、本実験値は 15%程度大きい値を示している。

標準的な熱中性子スペクトル場と ENDF/B-VI に与えられている $^{235}\text{U}(n, f)$ 反応断面積 586.2 bを用いて 2200 m/s(0.0253 eV)中性子に対する ^{241}Am の核分裂断面積を測定した。この場合も、KULSを用いた実験の場合と同様、 ^{241}Am と ^{235}U 電着膜をセットした BTBチェンバーを用いている。0.0253 eVにおける本測定の結果として 3.15 ± 0.097 bを得た。この値は Fig. 7-10 に示した KULS における測定結果の外挿値とよく一致している。核分裂計数値はパルス波高分布曲線を弁別レベル以上の領域で積分することにより求めた。本測定における主な誤差は、統計誤差 (^{241}Am の核分裂測定：0.4 %、 ^{235}U の核分裂測定：0.04 %)、弁別レベル値の不確かさによる核分裂計数値誤差 (^{241}Am の核分裂計数：1.5 %、 ^{235}U の核分裂計数：1.1 %)、 g -因子に起因する誤差 (^{241}Am ：1.3 %、 ^{235}U ：0.12 %)、 $^{235}\text{U}(n, f)$ 反応の標準断面積の不確かさ (1 %以下) /14, 17/、試料の原子数導出に伴う誤差 (Table 7-1)、BTBチェンバー内における ^{241}Am と ^{235}U 電着膜の配置に対する補正誤差 (0.25%) であった。 ^{241}Am g -因子の誤差については、Mughabghab/17/と Gryntakis等/47/が与えている因子データ間の違いを誤差とした。その他の誤差及び補正量は小さく、KULSによる実験と同様に無視できると仮定した。従って、 $^{241}\text{Am}(n, f)$ 反応の熱中性子断面積測定における全実験誤差はこれらの誤差の2乗

和の平均として約3.1 %となる。

0.0253 eVにおける $^{241}\text{Am}(n, f)$ 反応断面積測定の結果を過去に測定された実験値及び評価値と比較してTable 7-5に示す。ENDF/B-VI、JEF-2.2及びMughabghabの評価値は本測定値とよく一致している。JENDL-3.2の評価値とDabbs等の測定値は、それぞれ本測定値より4.2 %、2.9 %小さい。他の6つの実験データはおおむね誤差内で本測定値と合っているがGavrilov等の値は約11 %小さくなっている。

本実験では、注意深く化学精製して高純度 ^{241}Am 試料を使用することができたので、本実験によって得られた断面積値は不純物による影響はほとんど受けていないと思われる。このことは、前にも述べたように、本測定値が最近の0.0253 eVにおける評価値とよく一致しているという事実によって確認できた。従って、 ^{241}Am 試料の KULSによる測定値についても試料中の不純物による影響はないものと思われる。

第6節 結 言

^{241}Am について、鉛減速スペクトロメータ (KULS) を用いて、そのエネルギー依存核分裂断面積を測定するとともに、標準熱中性子スペクトル場を用いて熱中性子核分裂断面積の測定を行った。本実験で求めた測定値を従来の実験データ及び評価済データENDF/B-VI 及びJENDL-3.2と比較し、これらの結果について検討を行った。

本研究において明らかとなったことを、以下にまとめる。

- (1) KULSを用いて $^{241}\text{Am}(n, f)$ 反応断面積を0.1 eV～10 keV 領域において測定した。本実験では、 ^{241}Am と ^{235}U の電着膜を背中合わせとする核分裂電離箱 (BTBチェンバー) を使用し、入射中性子束を $^{235}\text{U}(n, f)$ 反応の標準断面積によってモニターした。また、1 keV以下のエネルギー領域では BF_3 カウンターによる $^{241}\text{Am}(n, f)$ 反応断面積の相対測定を行い、200 eV～1 keV領域で ^{235}U 核分裂電離箱による測定値に規格化した。

本実験の結果、Dabbs等の実験値、及び ENDF/B-VI の評価値は本実験値に近いことが分かった。JENDL-3.2 評価データも全般的に本実験値と一致したが、10～200 eV領域では、本実験値や ENDF/B-VI データと比べて明らかに（約2倍程度）低い値を示した。JENDL-3.2 は、10～200 eV のエネルギー領域で再評価、修正の必要がある。

- (2) 共鳴領域における $^{241}\text{Am}(n, f)$ 反応断面積測定の結果は、その絶対値や断面積曲線の形状が実験値の間で大きく違っており、必ずしも妥当なものとは言えない。このような状況の下で得た今回の測定結果は、既存の評価済データの検討評価において有用なデータを提供するものである。
- (3) 2200m/s (0.0253 eV) 中性子に対する $^{241}\text{Am}(n, f)$ 反応断面積をMaxwell分布を示す標準熱中性子スペクトル場において測定した。この場合も $^{235}\text{U}(n, f)$ 反応断面積を標準とした BTBチェンバーを使用した。 $^{241}\text{Am}(n, f)$ 反応断面積の評価済データ JENDL-3.2 及び ENDF/B-VI は何れも今回の測定値 3.15 ± 0.097 bに近い値を示している。従来の実験データは殆どが1950～1970年代に測定されたものであるが、2～3の実験データを除けば概ね今回の測定値と一致している。
- (4) 本研究では、BTBチェンバー、鉛減速スペクトロメータ KULS、及び標準熱中性子スペクトル場を用いることにより、強いアルファ放射体である ^{241}Am 試料の核分裂断面積を測定することができた。特に、共鳴中性子領域のエネルギー依存断面積測定は強力中性子源である KULSの特長を生かしたものである。今後も引き続き、強いアルファ放射体の微量試料に対する断面積測定にKULSを応用して行くことが期待できる。

[参考文献]

- /1/ S. Yamamoto, et al. : Nucl. Sci. Eng., **126**, 201 (1997).
- /2/ D. Lancaster : Proc. Int. Conf. and Technology Exposition Future Nuclear Systems, Global '93, Seattle, Washington, September 12-17, 1993, p.609, American Nuclear Society (1993).
- /3/ J. Tommasi, et al. : Proc. Int. Conf. and Technology Exposition Future Nuclear Systems: Global '93, Seattle, Washington, September 12-17, 1993, p.1252, American Nuclear Society (1993).
- /4/ T. Wakabayashi, et al. : Proc. Int. Conf. Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems : Global '95, Versailles, France, September 11-14, 1995, p.800, Commissariat a l'Enrgie Atomique (1995).
- /5/ J. L. Kloosterman, et al. : Proc. Int. Conf. Evaluation of Emerging Nuclear Fuel Cycle Systems : Global '95, Versailles, France, September 11-14, 1995, p.1106, Commissariat a l'Enrgie Atomique (1995).
- /6/ T. Mukaiyama, et al. : J. At. Energy Soc. Japan, **37**, 159 (1995).
- /7/ J. W. T. Dabbs, et al. : Nucl. Sic. Eng., **83**, 22 (1983).
- /8/ B. R. Leonard, Jr., et al. : Bull. Am. Phys. Soc., **4**, 31 (1959).
- /9/ C. D. Bowman, et al. : Phys. Rev., **137**, B326 (1965).
- /10/ V. F. Gerasimov : Yaderno-Fizicheskie Issledovaniya, **2**, 16 (1966).
- /11/ P. A. Seeger, et al. : Nucl. Phys., **A96**, 605 (1967).
- /12/ H. Drrien, et al. : Proc. Int. Conf. Nuclear Cross Section and Technology, Washington, D.C., March 3-7, 1975, Vol. 2, P.637, U.S. Government Printing Office (1975).
- /13/ D. B. Gayther, et al. : Proc. 4th All-Union Conf. Neutron Physics, Kiev, Union of Soviet Socialist Republics, Part 3, p.3 (1977).
- /14/ R. F. Rose(Ed.) : BNL-NCS-17541, 4th ed. (ENDF/B-VI), Brookhaven National

Laboratory (1991).

- /15/ T. Nakagawa, et al. : J. Nucl. Sci. Technol., **32**, 1259 (1995).
- /16/ C. Nordborg, et al. : Proc. Int. Conf. Nucl. Data Science and Technology, Gatlinburg, Tennessee, May 9-13, 1994, Vol.2, p.680, American Nuclear Society (1994).
- /17/ S. F. Mughabghab : "*Neutron Resonance Parameters and Thermal Cross Section*", Vol.1, Part B, Academic Press, New York (1984).
- /18/ G. C. Hanna, et al. : Phys. Rev., **81**, 893 (1951).
- /19/ B. B. Cunningham, et al. : Phys. Rev., **82**, 558 (1951).
- /20/ E. K. Hulet, et al. : Phys. Rev., **107**, 1294 (1957).
- /21/ M. A. Bak, et al. : Atomnaya Energiya, **23**, 316 (1967).
- /22/ V. D. Gavrilov, et al. : Atomnaya Energiya, **41**, 85 (1975).
- /23/ K. D. Zhuravlev, et al. : Atomnaya Energiya, **39**, 285 (1975).
- /24/ R. E. Slovacek, et al. : Nucl. Sci. Eng., **62**, 455 (1977).
- /25/ H. T. Maguire, Jr., et al. : Nucl. Sci. Eng., **62**, 455 (1977).
- /26/ B. Alam, et al. : Nucl. Sci. Eng., **99**, 267 (1988).
- /27/ C. Wagemans : Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res., **A236**, 429 (1985).
- /28/ K. Kobayashi, et al. : Proc. Int. Conf. Nucl. Data Science and Technology, Gatlinburg, Tennessee, Vol.1, p.242 (1994).
- /29/ M. Miyoshi : MS Thesis, Department of Nuclear Engineering Kyoto University, (1995).
- /30/ M. Obu : JAERI-M 9757, Japan Atomic Energy Research Institute (1981).
- /31/ K. Kobayashi, S. Yamamoto, et al. : Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res., **A 385**, 145 (1997).
- /32/ K. Kobayashi, et al. : J. Nucl. Sci. Technol., **31**, 1239 (1994).
- /33/ Y. Nakagome, et al. : Phys. Rev., **C 43**, 1825 (1991).
- /34/ S. Usuda, et al. : Separation Science Technol., **23**, 1119 (1988).
- /35/ N. Shinohara, et al. : Appl. Radiat. Isot., **40**, 41 (1989).
- /36/ ニコラス・ツルファニデイス著、阪井英次訳、"放射線計測の理論と演習 (上

- 卷)」、p. 269 現代工学社 (1986).
- /37/ E. Browne and R. B. Firestone : "*Table of Radioactive Isotopes*", A Wiley-Interscience Publication, John Wiley & Sons, Inc., New York (1986).
- /38/ T. Tsuruta, et al. : J. Nucl. Sci. Technol., **29**, 1108 (1992).
- /39/ S. J. Watson, et al. : Nucl. Phys., A **548**, 365 (1992).
- /40/ Technical Reports Series No. 273 "*Handbook on Nuclear Activation Data*", IAEA Vienna, (1987).
- /41/ "*MCNP-A General Monte Carlo Code for Neutron and Photon Transport, Version 3A*", LA-7396-M, Rev. 2, Los Alamos National Laboratory (1986).
- /42/ J. A. Grundl, et al., Nucl. Technol., **25**, 237 (1975).
- /43/ K. Kanda, et al. : Nucl. Instrum. Meth., **148**, 535 (1978).
- /44/ ラマーシュ著、武田充司、仁科浩二郎 訳、"原子炉の初等理論 (上)"、P.363 吉岡書店 (1974).
- /45/ A. Yamanaka, et al. : J. Nucl. Sci. Technol., **30**, 863 (1993).
- /46/ Technical Reports Series, No. 227, IAEA (1983).
- /47/ E. M. Gryntakis, et al. : Radiochimica Acta, **22**, 128 (1975).

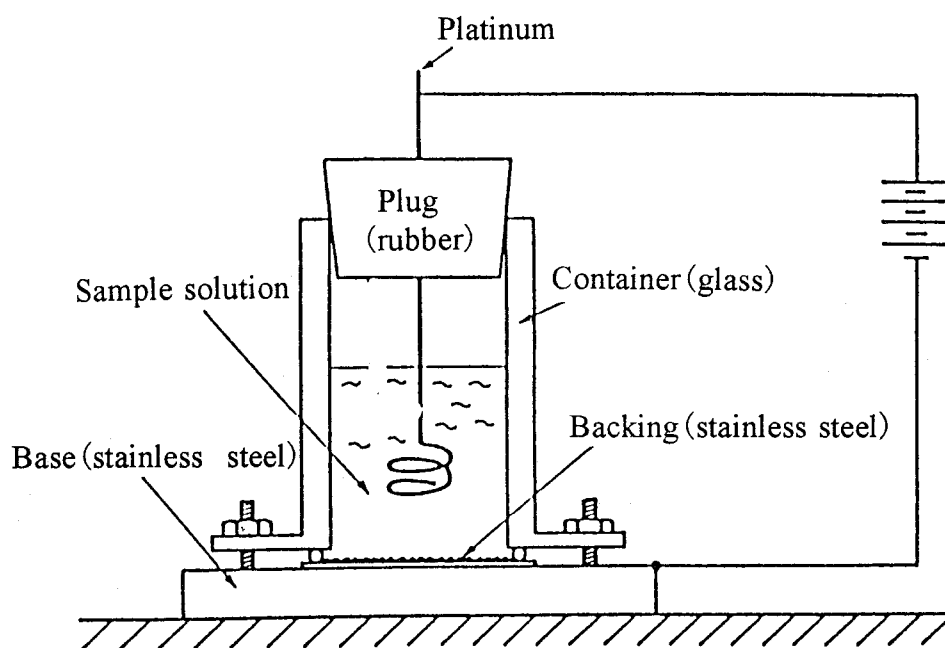


Fig. 7-1. Setting for electrodeposit.

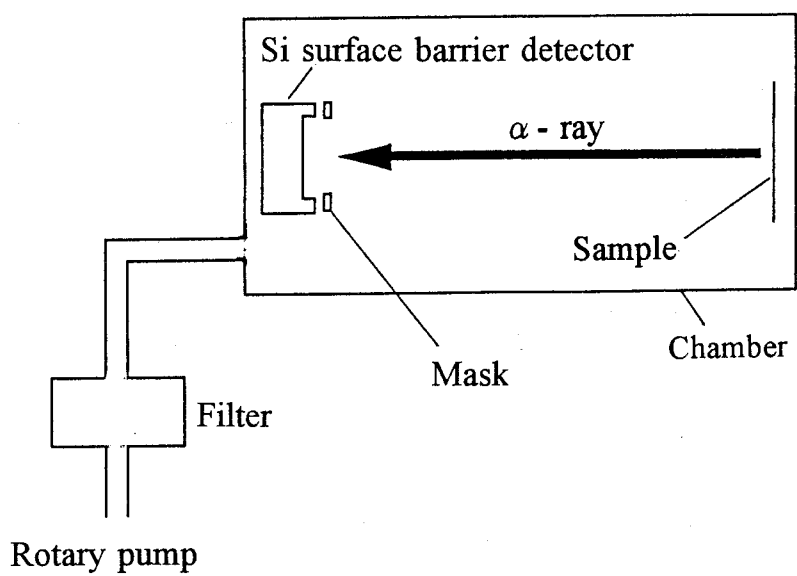


Fig. 7-2. Experimental arrangement of the α -ray measurement.

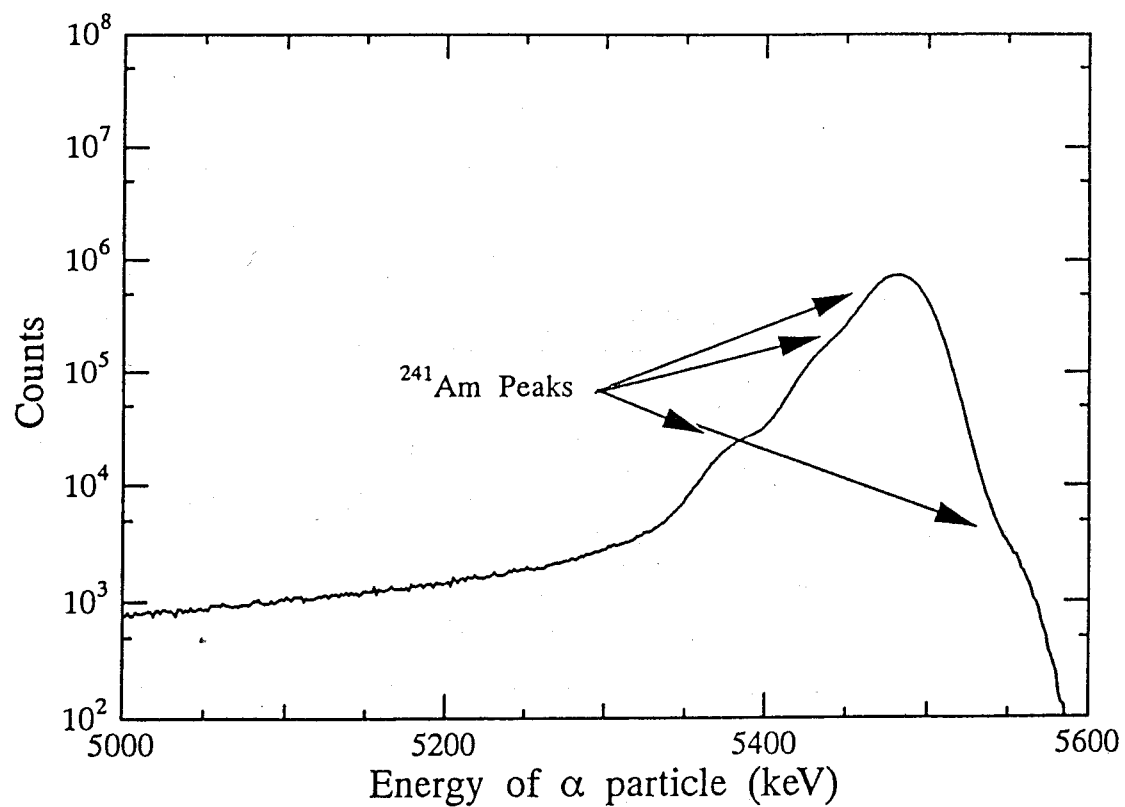


Fig. 7-3. α -ray spectrum of the ^{241}Am sample.

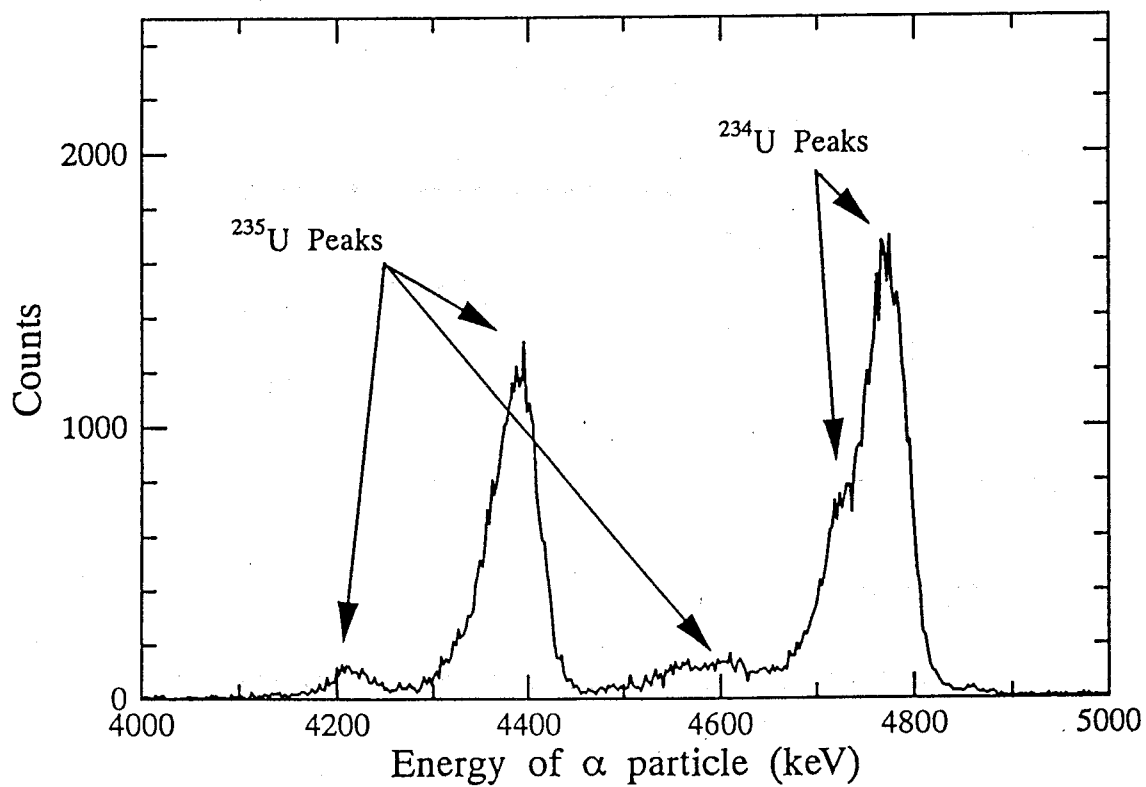


Fig. 7-4. α -ray spectrum of the ^{235}U sample.

Table 7-1. Determination of the number of atoms for the ^{241}Am and ^{235}U oxide deposits

Method	^{241}Am Deposit	^{235}U Deposit
Alpha spectroscopy	$(1.722 \pm 0.022) \times 10^{16}$	$(3.289 \pm 0.039) \times 10^{17}$
Gamma spectroscopy	$(1.796 \pm 0.053) \times 10^{16}$	$(3.253 \pm 0.094) \times 10^{17}$
Weighted mean value	$(1.734 \pm 0.020) \times 10^{16}$	$(3.283 \pm 0.036) \times 10^{17}$

Table 7-2. Detection efficiency of α -counting for the ^{241}Am and ^{235}U oxide deposits

Sample	^{241}Am	^{235}U
Diameter of the sample (mm)	20	20
Effective radius of the Si surface barrier detector	4.033 ± 0.025	8.00 ± 0.025
Distance between sample and Si surface barrier detector (mm)	400.9 ± 0.9	91.8 ± 0.5
Detection efficiency	$(2.529 \pm 0.033) \times 10^{-5}$	$(1.869 \pm 0.021) \times 10^{-3}$

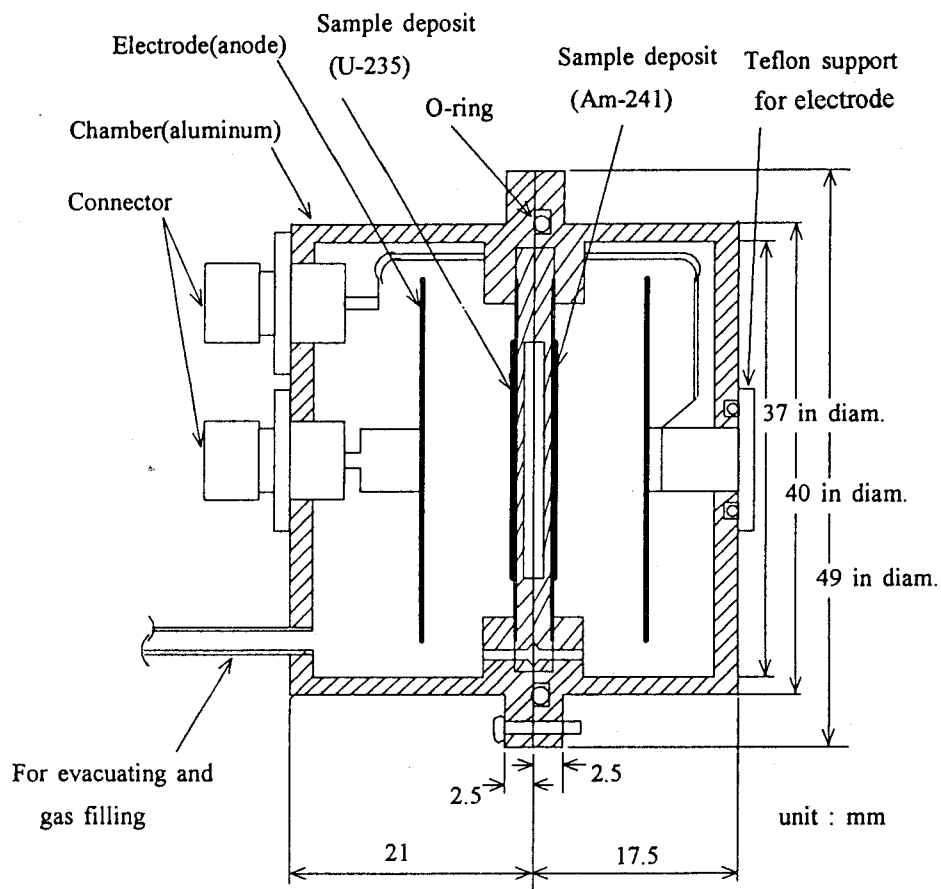


Fig. 7-5. Cross-section view of the BTB chamber.

Table 7-3. Experimental uncertainties for the current measurement.

Causes of Uncertainties		Error (%)
Statistical error for ^{241}Am		0.08 to 6.2
Statistical error for ^{235}U		0.06 to 1.1
Assignment of fission counts for ^{241}Am		<1.9
Assignment of fission counts for ^{235}U		<0.65
Number of atoms of ^{241}Am		1.3
Number of atoms of ^{235}U		1.2
Reference cross section for the $^{235}\text{U}(n,f)$ reaction		2 to 4
Reference cross section for the $^{10}\text{B}(n,\alpha)$ reaction		2
Correction for the setting position of the ^{241}Am and ^{235}U deposits in the BTB chambers		<0.3
Correction for scattering of inscattered neutrons by the chambers		<0.2
Correction to background subtraction		<0.2 to 0.4
	Energy Range (eV)	Error (%)
Total uncertainties	0.1 to 0.89	4.1
	0.89 to 3.55	4.6
	3.55 to 20.0	4.2
	20.0 to 200	4.4
	200 to 1000	5.7
	1000 to 10 000	8.6

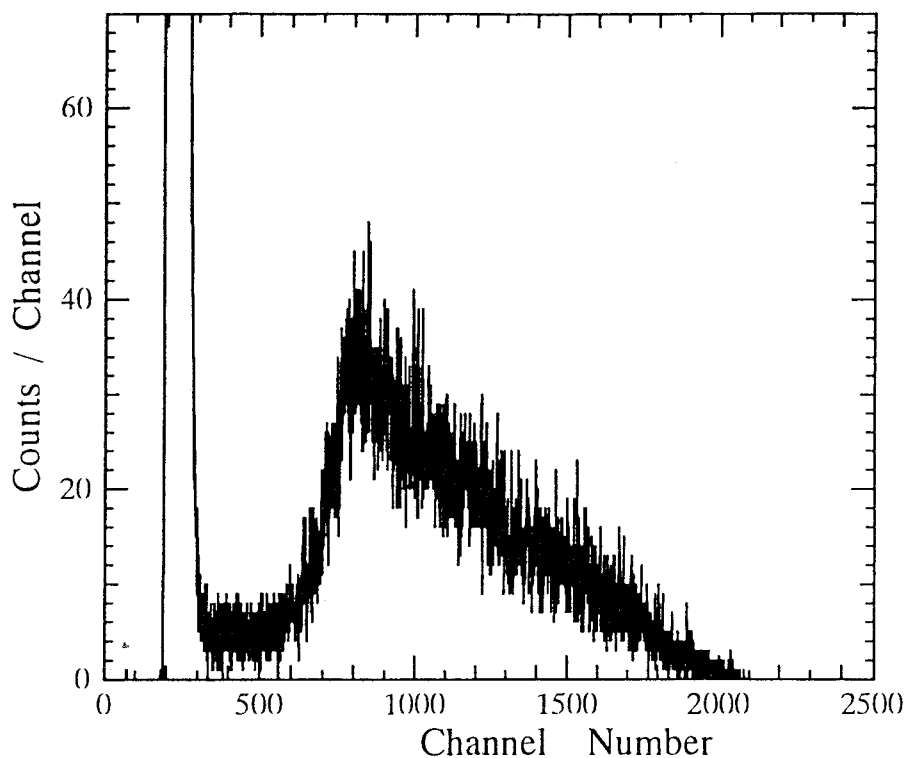


Fig. 7-6. Pulse height distribution of fission fragments for ^{241}Am with the BTB chamber.

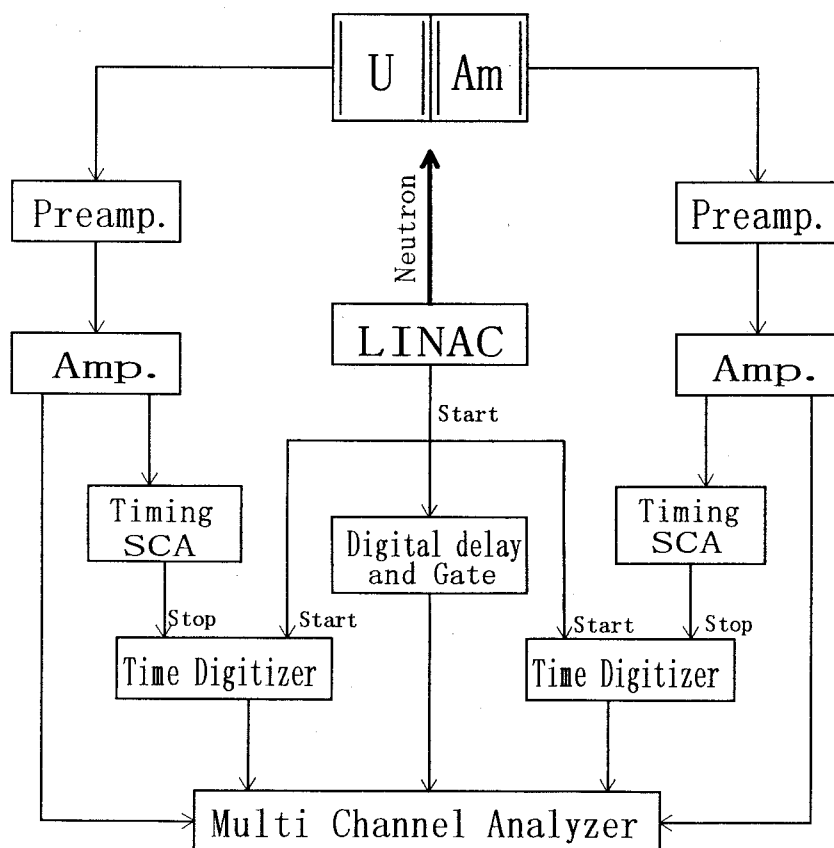


Fig. 7-7. Block diagram of electronic circuits to measure time dependent fission counts with the BTB chamber.

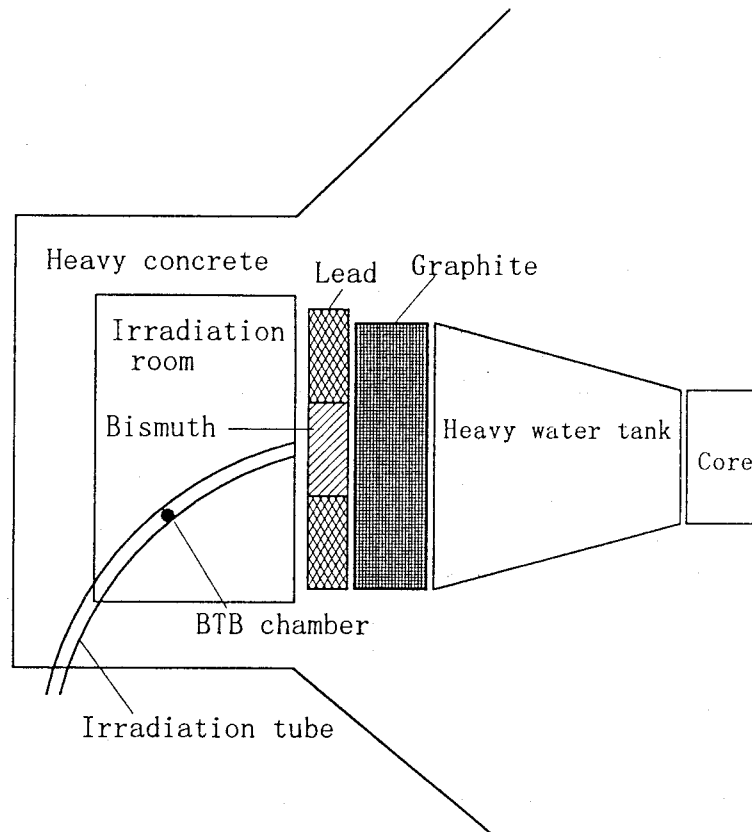


Fig. 7-8. Outline of the D₂O facility at the KUR.

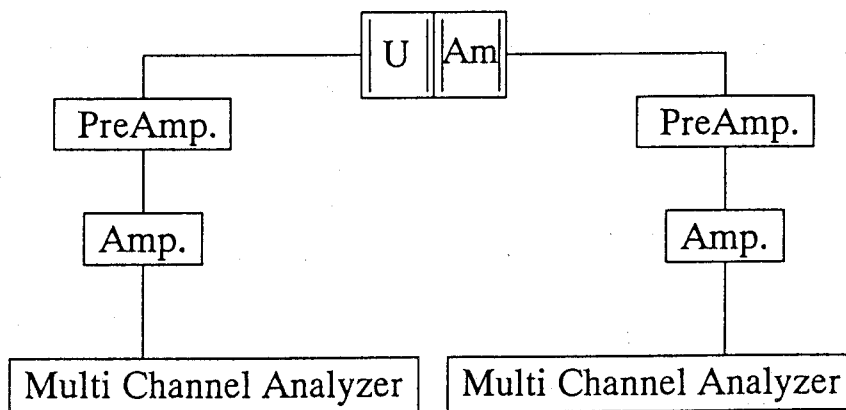


Fig. 7-9. Block diagram of electronic circuits to measure the fission cross section for thermal neutrons.

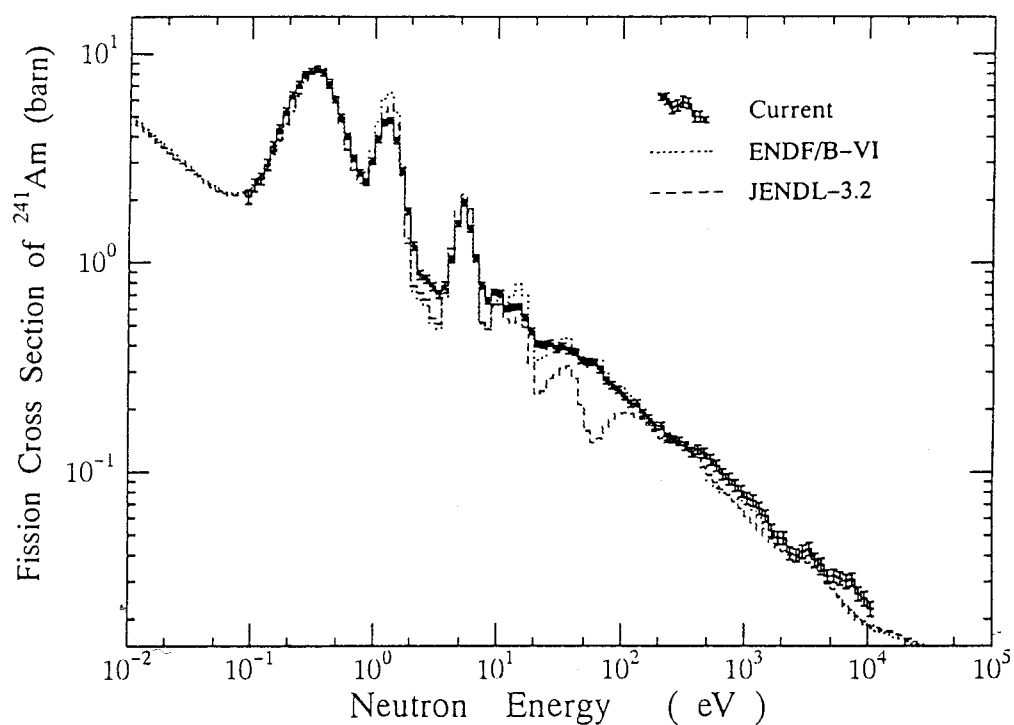


Fig. 7-10. Comparison of the evaluated fission cross section of ^{241}Am with the current measurement. The evaluated data are broadened by the energy resolution of the KULS.

Table 7-4. Comparison of mean values of the ^{241}Am fission cross section from the current work with those from ENDF/B-VI, JENDL-3.2, and the data by Dabbs, Johnson and Bemis

Energy Range (eV)	Average Cross Sections (b)			
	ENDF/B-VI	JENDL-3.2	Dabbs, Johnson, and Bemis	Current
0.1 to 0.89	4.753+0 ^a	4.724+0	5.133+0	4.897+0 ± 0.199
0.89 to 3.55	2.046+0	1.853+0	2.182+0	1.914+0 ± 0.0875
3.55 to 20.0	7.982-1	7.106-1	8.438-1	7.636-1 ± 0.0317
20.0 to 200	2.558-1	1.893-1	2.524-1	2.514-1 ± 0.0111
200 to 1000	9.701-2	9.708-2	10.224-2	10.965-2 ± 0.00628
1000 to 10 000	3.031-2	3.009-2	3.110-2	3.570-2 ± 0.00308

^aRead as $4.753 \times 10^{+0}$.

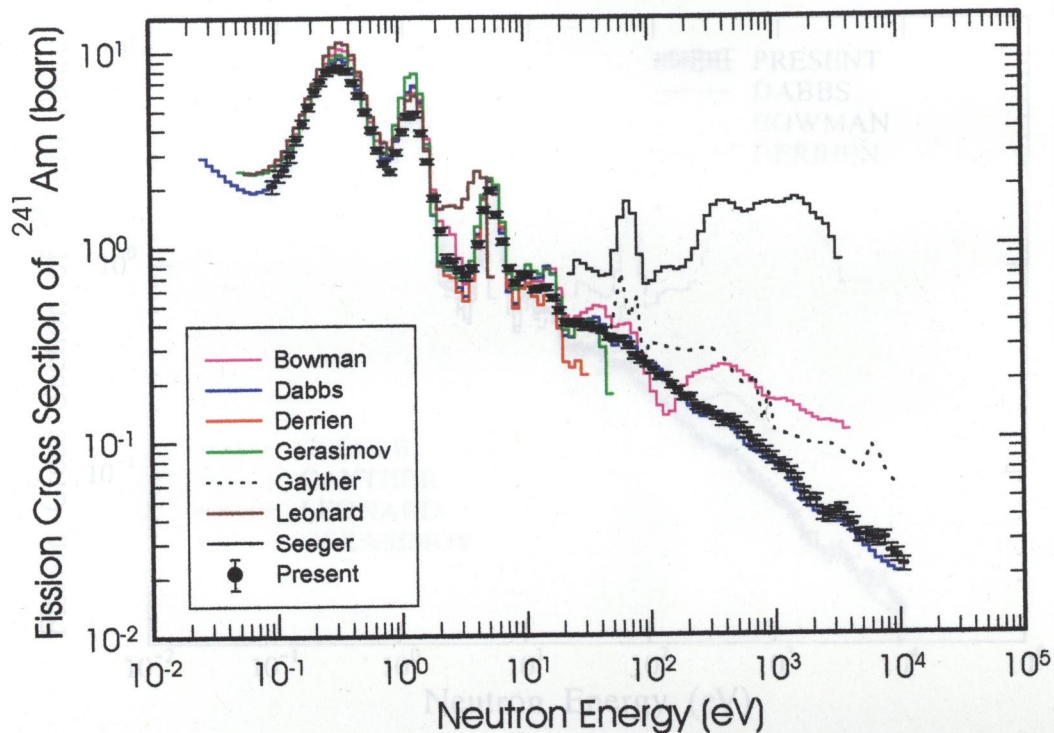


Fig. 7-11. Comparison of the existing experimental data with current measurement. The experimental data are broadened by the energy resolution of the KULS.

Table 7-5. Thermal neutron cross sections (2200 m/s Value) for the $^{241}\text{Am}(n,f)$ reaction

Cross Section (b)	Reference
3.15 ± 0.097	Current
3.153	ENDF/B-VI (1991) (Ref.14)
3.019	JENDL-3.2 (1995) (Ref.15)
3.177	JEF-2.2 (1994) (Ref.16)
3.20 ± 0.09	Mughabghab (1989) (Ref.17)
3.06 ± 0.19	Dabbs, Johnson, and Bemis (1983) (Ref.7)
3.0	Hanna et al. (1951) (Ref.18)
3.0 ± 0.2	Cunningham and Ghiorso (1951) (Ref.19)
3.13 ± 0.15	Hulet et al. (1957) (Ref.20)
3.15 ± 0.10	Bak et al. (1967) (Ref.21)
2.8 ± 0.25	Gavrilov et al. (1975) (Ref.22)
3.2 ± 0.15	Zhuravlev et al. (1975) (Ref.23)

第8章 結 論

第8章 結 論

本研究で得られた結論は、既に各章の終わりに結言として述べている。本章は本研究で得られた成果としてこれら各章の結論を総括し、今後の課題と展望を述べて本論文の結びとする。

第1節 総 括

本論文は8章から構成され、第1章（序論）においては、本研究の背景・目的及び本研究において試みた2種類の測定技術開発に関する着想について述べた。第2章から第5章においては、新しい中性子捕獲事象検出器としてBGOシンチレータを用いた全エネルギー吸収型ガンマ線検出器を試作し、その特性を明らかにすると共に、これが捕獲断面積の絶対測定に応用できることを示した。さらに、共鳴捕獲試料と本検出器を組み合わせることにより、高い信号／雑音比を特長とする中性子共鳴捕獲検出器として中性子全断面積の精密測定に応用できることを示した。第6章及び第7章においては、電子線形加速器をパルス中性子源とした鉛減速スペクトロメータを設置し、その特性を明らかにすると共に、実際に本スペクトロメータの特長を生かした強放射性、微量試料の断面積測定を行うことによりその有効性を示した。

第2章から第7章までに得られた本研究の結果及び成果を要約すると次のとおりである。

(1) BGOシンチレータを用いた中性子捕獲事象測定用検出器の開発とその特性

第2章では、中性子捕獲断面積測定のためのガンマ線検出器として、BGOシンチレータを用いた全エネルギー吸収型ガンマ線検出器の試作について述べ、実験と解析により明らかにしたその特性を示した。得られた結果をまとめると、

- ① BGOシンチレータを組み合わせた1.5ℓの全容積を持つBGO検出器系は、

全エネルギー吸収型検出器として満足できるパルス波高特性を有していることを、タンタル、金、鉄の捕獲ガンマ線カスケードに対する実験により明らかにした。また、本検出器は1300 ℓの有機液体シンチレータと同程度以上のパルス波高特性を持つことを確認した。

- ② BGOシンチレータを用いた全エネルギー吸収型検出器の設計用にモンテカルロ計算コードを作成した。これを用いて捕獲ガンマ線に対する検出器の応答を計算したところ、パルス波高特性実験の結果をよく再現していることが分かった。検出効率など定量的には若干の改善を要するが、検出器の形状や容量の設計に役立つ成果を得ることができた。
- ③ BGOシンチレータは、中性子捕獲実験用試料によって散乱された中性子に対してある程度の感度を持っているが、厚さ3 mmの ${}^6\text{LiF}$ タイルで検出器の貫通孔内を遮蔽すれば、中性子エネルギー10 eV以下の領域では、その影響をほぼ完全に取り除けることが分かった。しかし、さらに高エネルギー領域の散乱中性子による影響を取り除くためには何らかの対策が必要である。
- ④ 本研究において開発使用したBGO検出器と ${}^{10}\text{B}(n, \alpha \gamma)$ 反応を組み合わせた測定系では、入射中性子束を1.5 %以上の精度で求めることが可能である。

(2) BGO検出器を用いた中性子捕獲断面積の絶対測定法

第3章では、電子線形加速器(ライナック)を用いた中性子飛行時間(TOF)分析法による中性子捕獲断面積の絶対測定に、試作したBGO検出器を応用した結果を示した。本研究により得られた成果をまとめると、

- ① 熱中性子捕獲断面積が大きく、中性子捕獲の際放出する即発ガンマ線の多重度が大きいサマリウム試料に着目して、これを利用した熱中性子の絶対測定法が確立できた。
- ② 試料に入射するエネルギー依存中性子束の測定に ${}^{10}\text{B}(n, \alpha \gamma)$ 反応を用いたが、この反応により放出される478keVガンマ線に対する検出効率の較正法を確立した。
- ③ 金や、アンチモンなどは数 eV 領域に大きな共鳴ピークを持つため、このエ

エネルギー点では試料による捕獲収率が飽和することを利用して、これらの試料による中性子捕獲事象の検出効率を校正する方法を確立した。

- ④ これらの手法を、標準断面積の1つとして良く知られている $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ 反応断面積の絶対測定に応用した。その結果は、ENDF/B-VI 及び JENDL Dosimetry Fileの評価済核データとよく一致し、本BGO検出器は全エネルギー吸収型検出器として中性子捕獲断面積の絶対測定に適用できることを確認した。

- ⑤ 次に、金に比べて散乱対捕獲の断面積比(σ_s/σ_a)が大きく、測定上不利な条件を持つアンチモン試料を選び、同様の測定を行った。その結果、ENDF/B-VI 及び JENDL-3.2の評価済核データは、本実験結果とよく一致していることが分かった。

本研究を通じて、今回試作したBGO検出器系はライナックをパルス中性子源とした飛行時間分析法による中性子捕獲断面積の絶対測定に適用できることが明らかとなった。

(3) BGO検出器を用いた中性子透過率精密測定のための共鳴捕獲検出器の開発と利用に関する研究

第4章では、BGO検出器と中性子共鳴捕獲試料としてタンタルを用いた中性子共鳴捕獲検出器を試作し、ライナックTOF法による中性子全断面積測定に応用した結果について示した。本研究で得られた成果をまとめると、

- ① 本検出器を用いた中性子飛行時間スペクトル測定では、タンタルの共鳴エネルギー点(4.28、10.4、14.0、23.9、35.9 及び 39.1 eV)において信号/雑音比が130~180の高い計数ピークが得られた。
- ② ライナックTOF法による中性子透過率測定用検出器としての有効性を調べるため、本検出器を用いて標準断面積の1つとしてよく知られているポリエチレンの中性子全断面積測定を行った。測定結果は、ENDF/B-IVの評価済核データをよく再現し、これが中性子全断面積の精密測定用中性子検出器として十分有用であることを確認した。

- ③ 本検出器の応用として、鉛の中性子全断面積測定を行った結果、4.28～39.1 eV 領域のデータ値は何れも11.17～11.18 bを示し測定誤差は0.2～0.5%の範囲内におさまる高精度の実験を達成することができた。

本研究ではタンタルを中性子共鳴捕獲試料として使用したが、他の共鳴捕獲試料と取り替えることにより、異なったエネルギー点における全断面積測定も可能であり、TOF法による中性子透過率の精密測定用検出器としての応用が期待できる。

(4) アンチモン、鉛-208及び天然鉛の全断面積測定

前章において中性子共鳴捕獲検出器系が中性子透過率の精密測定に有用であることを明らかにしたことを受けて、第5章では、共鳴捕獲試料として金、インジウム、タンタル、アンチモンを用いた共鳴捕獲検出器によるアンチモン、鉛-208及び天然鉛の中性子全断面積測定の結果を示した。さらに、共鳴捕獲試料に換えて ^{10}B 試料を用いた場合や、 ^6Li ガラスシンチレータを用いた連続エネルギーでの測定結果も示している。これらの結果についてまとめると、

- ① 低エネルギー領域 (0.01 ～10 eV) におけるアンチモンの中性子全断面積の測定には、共鳴捕獲試料として金、インジウムを用いた測定及び ^{10}B 試料を用いた連続エネルギーでの測定を行った。1eV以下の領域では、旧データのほとんどが本実験値に比べて約10 % 程度小さいこと、Mughabghabによる評価曲線もまた0.035 eV以上のエネルギーで5%程度小さいことが明らかとなった。比較的新しい Koester等の測定値と中性子全断面積に関するGranadaの計算は本測定値に近い結果を示している。
- ② 高エネルギー領域 (5 keV ～3 MeV) におけるアンチモンの中性子全断面積測定に関しては、非分離共鳴領域のため中性子共鳴捕獲検出器が使用できないので、これを ^6Li ガラスシンチレータに換えて測定した。旧来のデータについては測定値がかなり分散しているが、ほぼその平均値を示しているMughabghabの評価曲線は本測定結果に非常に近いことが分かった。
- ③ 鉛-208及び天然鉛の中性子全断面積については、タンタル、アンチモンを共

鳴捕獲試料とした場合、及び ^{10}B 試料を用いた連続エネルギーでの測定を行った。また、鉄フィルター(24keV)、及び シリコンフィルタービーム(54、144keV)による測定も実施した。これらの実験に対し、誤差は 54 keV の測定値(1.3%)を除き、1% 以内の精度で求めることができた。最近の実験値は何れも本実験値と誤差の範囲内でよい一致を示している。しかし、JENDL-3 及び ENDF/B-VI の評価値については、本実験値との間で僅か(1~2%)に差異を示し、今後の修正が望まれる。

- ④ 本実験では、BGOシンチレータに中性子共鳴捕獲試料を組み合わせた検出器系と、中性子共鳴捕獲試料を ^{10}B に換えた検出器系による測定結果がそれぞれ実験誤差内でよい一致を示した。このことは、実験における系統的な誤差は小さく、それだけ本実験結果に高い信頼度を与えていると言える。

(5) 鉛減速スペクトロメータの設置とその特性

第6章では、電子線形加速器をパルス中性子源とした鉛減速スペクトロメータ(KULS)について、実験と計算によりその特性を明らかにした。本研究で得られた結果についてまとめると、

- ① BF_3 カウンターによる共鳴フィルターの中性子透過率測定とArガスカウンターによる共鳴フィルターの捕獲ガンマ線測定の実験から、中性子の減速時間とエネルギーの関係($E=K/t^2$)を特徴付ける減速定数 K を求めた。その結果、ビスマス実験孔で $190 \pm 2 (\text{keV} \cdot \mu\text{s}^2)$ 、鉛実験孔で $156 \pm 2 (\text{keV} \cdot \mu\text{s}^2)$ を得た。
- ② 上述の実験において得られた時間スペクトルの凸凹形状から算出したKULSのエネルギー分解能(半値幅)は数eV~500eV領域において約40%、この領域の低エネルギー側及び高エネルギー側ではこれを上回るエネルギー分解能を示すことが分かった。
- ③ MCNPコードを用いたモンテカルロ計算の結果得られた減速定数 K の値は実験値とよく一致したが、エネルギー分解能については実験値(約40%)より小さく約30%となった。この違いについて計算による検討を加えた結果、KULSの不純物、中性子源から放出された高速中性子と鉛の非弾性散乱による影響など

が積み重なって起きたものと考えられる。

- ④ KULS内の中性子スペクトルを、SAND-II 及び NEUPACコードを用いた多数組放射化箔法と飛行時間分析法により求めた。これらの測定結果と JENDL-3、ENDF/B-IV、ENDL-85 断面積ライブラリーを用いた MCNP 計算の結果を比較したところ、100keV以下のエネルギー領域で、ENDF/B-IV評価データを用いた計算結果はTOF測定の結果より25～50%程度大きくなったことを除けば実験値及び計算値はよい一致を示した。また、KULS内の中性子束空間分布を放射化法によって測定した結果、中性子源の周りではほぼ等方分布を示していることが分かった。

(6) 鉛減速スペクトロメータ及び標準熱中性子場を用いた ^{241}Am 核分裂断面積の測定

第7章では、鉛減速スペクトロメータ(KULS)を用いて、原子力発電所の長寿命高レベル放射性廃棄物の主要核種である強アルファ放射体で、消滅処理の観点からも注目されているマイナーアクチニド(MA)の1つ ^{241}Am について、0.1eV～10 keV にわたりそのエネルギー依存核分裂断面積を測定した結果ならびに標準熱中性子スペクトル場を用いた熱中性子核分裂断面積の測定結果を示した。本研究で明らかとなったことを、以下にまとめる。

- ① 本実験の結果、 $^{241}\text{Am}(n, f)$ 反応に関するENDF/B-VIの評価値は本実験値に近いことが分かった。JENDL-3.2評価データも全般的には本実験値と一致するが、10～200eV領域で、本実験値やENDF/B-VIデータと比べて明らかに(50%程度)小さい値を示した。JENDL-3.2データは、10～200eVのエネルギー領域で再評価、修正の必要がある。
- ② 共鳴領域における $^{241}\text{Am}(n, f)$ 反応断面積測定の現状は、その絶対値や断面積曲線の形状が実験値間で大きく違っており、必ずしも妥当なものとは言えない。このような状況の下で得た本測定の結果は、既存の評価済データの検討評価において有用なデータを提供するものである。
- ③ 2200m/s (0.0253 eV)中性子に対する $^{241}\text{Am}(n, f)$ 反応断面積をMaxwell分布を示

す標準熱中性子スペクトル場において測定した。 $^{241}\text{Am}(n, f)$ 反応断面積の評価データ JENDL-3.2 及び ENDF/B-VIは何れも本測定値 3.15 ± 0.097 b に近い値を示している。従来の実験データは殆どが1950～1970年代に測定されたものであるが、2～3の実験データを除けば概ね本実験値と一致している。

- ④ 本研究では、背中合わせ型の核分裂電離箱(BTBチェンバー)、鉛減速スペクトロメータ(KULS)、及び標準熱中性子スペクトル場を用いることにより、強いアルファ放射体である ^{241}Am 試料の核分裂断面積を測定することができた。特に共鳴中性子領域のエネルギー依存断面積測定は強力中性子源であるKULSの特長を生かしたものである。今後も引き続き、強いアルファ放射体の微量試料に対する断面積測定にKULSの応用が期待できる。

第2節 今後の課題と展望

本研究目的の1つは、従来の大型有機液体シンチレータに代えてBGOシンチレータを用いることにより、その容積を約1/1000に小型化した全エネルギー吸収型ガンマ線検出器を開発試作することであった。これは、大型液体シンチレータの持つ長所を残しながら、いくつかの欠点を改善しようとするものである。特性試験の結果ならびに断面積測定への応用などから一応の成果が得られたと言える。しかし、小型化に伴い中性子入射用貫通孔の寸法を小さくする必要があり、これに合わせて本研究では中性子ビームの直径を15mmにコリメートして使用しなければならなかった。例えば、直径50mmの中性子ビームを使用すれば捕獲事象の計数率は10倍以上となり統計精度、信号／雑音比などに大きな改善が期待できる。より実用的な検出器として利用するためにも、貫通孔を大きくし、大きな試料による測定ができるようにすることが望まれる。このことは、試料による散乱中性子の感度を下げるために必要な貫通孔内面の遮蔽材の増量のためにも必要である。しかし、全容積の割合に比べ貫通孔径が大きくなれば検出器の性能低下を招くことになる。今後は全エネルギー吸収型検出器としての性能を低下させることなく、これらの問題を改善する工夫・対策が必要である。

本検出器は8個（または12個）のBGOシンチレータで構成されているが、

各シンチレータは光学的に独立した構造であるため中性子捕獲に伴う即発ガンマ線の多重度に関する情報も得ることができる。本研究ではこの情報を信号／雑音比の改善に利用したが、更に放射性試料からのガンマ線による影響の除去や捕獲事象と核分裂事象の区別等にも応用できる。これらの手法を確立することにより、中性子捕獲と核分裂断面積の同時測定、これまで測定が容易でなかった放射性試料に対する断面積測定の精度向上にも期待がかけられる。

次に、電子線形加速器と組み合わせた鉛減速スペクトロメータを設置し、実験と計算の両面からその詳細な特性を明らかにした。これを用いて強アルファ放射体である ^{241}Am の核分裂断面積を測定することにより本測定手法の有効性を示した。次段階として、強力中性子源である鉛減速スペクトロメータKULSの特長を生かした中性子捕獲断面積測定の可能性について検討している。そのためには、鉛減速スペクトロメータ内で使用可能な捕獲事象測定用検出器の開発が急務であり、今後の重要な研究課題の1つと言える。

謝 辞

本研究の計画から遂行までにわたり、深い御理解と終始変わらぬ御指導と御鞭撻を賜りました京都大学原子炉実験所の藤田薫顕教授に深甚の謝意を表します。

本研究を成し遂げ、かつ本論文を完成するに際し、終始変わらぬ御指導と幾多の有意義なご教示を賜りました京都大学大学院工学研究科の木村逸郎教授に心から感謝申し上げます。

また、本研究を行うにあたり、詳細な御指導と暖かい励ましを頂き、また、まとめ方の基本的な御指導をして下さった京都大学原子炉実験所の小林捷平助教授に心から感謝申し上げます。

立教大学の林 脩平助教授、京都大学工学部の金澤 哲助手にはライナック共同利用研究に関連して多くの御指導、御協力を頂きました。ここに感謝の意を表します。

鉛スペクトロメータの東京大学原子力総合センターからの移設にあたっては、東京大学工学部の中沢正治教授並びに京都大学原子炉実験所の中込良廣助教授に大変お世話になりました。特に、中込良廣助教授には、鉛スペクトロメータの解体、運搬、組立に際し、多くの有益な御指導と御協力を頂きました。ここに心より感謝申し上げます。またライナックターゲット室への設置に際しては、京都大学原子炉実験所の釜江克宏助教授から建築構造上のコメントを頂きました。心より感謝申し上げます。

鉛スペクトロメータの特性及び ^{241}Am の核分裂断面積測定に際し、大学院生の山中章広氏（現在、日立製作所）、三好光晴氏（現在、GE & 横河メディカルシステム）の御協力を得ました。ここに感謝の意を表します。

^{241}Am 試料の製作にあたり、日本原子力研究所アイソトープ部研究開発課の篠原伸夫博士に御協力頂きました。ここに感謝の意を表します。

また、 ^{241}Am 試料の均一性を調べるためのアルファ線飛跡分布測定では、近畿

大学原子力研究所の鶴田隆雄教授に大変お世話になりました。深く感謝いたします。

京都大学原子炉実験所の木村康洋技官、高見 清技官には実験データの収集・処理のための計算機の使用、測定回路系の製作などに関して大変有益な助言と御協力を頂きました。また、光中性子ターゲット、BGO検出器など実験装置の製作にあたっては阪上勝美技官、坪倉宏嗣技官、村上 勉技官に大変お世話になりました。ここに記して感謝の意を表します。

最後になりましたが、著者が京都大学原子炉実験所へ入所以来これまでに多くの御指導を頂いた柴田俊一京都大学名誉教授に心より感謝の意を表します。

以上の他、多くの方々の御援助により本論文を完成することが出来ました。とりわけ、原子炉安全管理部の皆様には大変お世話になりました。ここに感謝の意をこめて厚くお礼申し上げる次第であります。

最後に、長い間の内助に対して、細やかながら妻 真理子に感謝の意を伝えたい。

発表論文一覧

発表論文一覧

Journals : (◎印は本論文に関連した論文)

- 1) Itsuro Kimura, Shu A. Hayashi, Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto and Toshikazu Shibata, "Fast Neutron Spectra from Natural Uranium Target Bombarded with High Energy Electrons", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.8, No.3, 173-175 (1971).
- 2) Itsuro Kimura, Katsuhei Kobayashi, Shu A. Hayashi, Shuji Yamamoto, Masato Ando, Satoshi Kanazawa, Hiroshi Nishihara and Yoshiharu Higashihara, "Calibration of Neutron Detectors for Time-of-Flight Experiment by Making Use of a Boronated Graphite Standard Neutron Spectrum Pile", Nucl. Instr. Meth., 137, 85-92 (1976).
- 3) Hiroshi Nishihara, Itsuro Kimura, Katsuhei Kobayashi, Shu A. Hayashi, Shuji Yamamoto and Masayuki Nakagawa, "Measurement and Analysis of Neutron Spectrum in Spherical Pile of Thoria", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.14, No.6, 426-437 (1977).
- 4) Takamasa Mori, Hiroshi Nishihara, Itsuro Kimura, Shu A. Hayashi, Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto and Masayuki Nakagawa, "Measurement and Analysis of Neutron Spectrum in a Molybdenum Pile", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.19, No.6, 427-437 (1982).
- 5) Kiyoshi Sakurai, Hiroshi Gotoh, Shuji Yamamoto, Katsuhei Kobayashi and Itsuro Kimura, "Cross Section Measurement for $^{199}\text{Hg}(n,n')^{199m}\text{Hg}$ Reaction from 0.78 to 6.3 MeV", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.19, No.10, 775-780 (1982).
- 6) Takamasa Mori, Hiroshi Nishihara, Itsuro Kimura, Shu A. Hayashi, Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto and Masayuki Nakagawa, "Assessment of Neutron Cross Sections for Titanium with Neutron Spectrum in Titanium Pile", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.20, No.12, 991-1005 (1983).
- 7) Saim Selvi, Shu A. Hayashi, Itsuro Kimura, Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto, Hiroshi Nishihara, Satoshi Kanazawa, Takamasa Mori and Masayuki Nakagawa, "Measurement and Analysis of Angular Neutron Spectra in a Manganese Pile", Atomkernenergie-Kerntechnik, Vol.45, No.3, 183-186 (1984).

- 8) Shuji Yamamoto, Kenji Yoneda, Shu A. Hayashi, Katsuhei Kobayashi, Itsuro Kimura, Takashi Suzuki, Hiroshi Nishihara and Satoshi Kanazawa, "Application of Iron-Filtered Neutrons to Radiography of a Copper Step within a Large Iron Block and to Computer Tomography of Metallic Cylinders", Nucl. Instr. Meth., 225, 439-444 (1984).
- 9) Takamasa Mori, Hiroshi Nishihara, Itsuro Kimura, Shu A. Hayashi, Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto and Masayuki Nakagawa, "Measurement and Analysis of Neutron Spectra in Lithium Fluoride and Polytetrafluoroethylene Piles", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.22, No.9, 708-722 (1985).
- © 10) Shuji Yamamoto, Yoshiaki Fujita, Toshikazu Shibata and Saim Selvi, "Characteristics of BGO Scintillator for Use in Neutron Capture Cross Section Measurements", Nucl. Instr. Meth., A249, 484-490 (1986).
- 11) Itsuro Kimura, Shu A. Hayashi, Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto, Hiroshi Nishihara and Takamasa Mori, "Assessment of Nuclear Data for Copper and Silicon by Neutron Spectra in These Piles", Radiation Effects, Vol.92/1-4, 199-202 (1986).
- 12) Shu A. Hayashi, Itsuro Kimura, Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto, Hiroshi Nishihara, Satoshi Kanazawa, Takamasa Mori and Masayuki Nakagawa, "Measurement and Analysis of the Neutron Spectrum in a Spherical Pile of Cu", Ann. Nucl. Energy, Vol.13, No.3, 131-140 (1986).
- 13) Shu A. Hayashi, Itsuro Kimura, Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto, Hiroshi Nishihara, Takamasa Mori, Satoshi Kanazawa and Masayuki Nakagawa, "Measurement and Analysis of Fast Neutron Spectra in Iron, Nickel and Chromium", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.24, No.9, 702-718 (1987).
- © 14) Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto and Yoshiaki Fujita, • "Application of a Resonance Capture Detector to the Precise Measurement of Neutron Total Cross Sections", Nucl. Instr. Meth., • A287, 570-575 (1990).
- 15) Hiroyuki Oigawa, Yoshiaki Fujita, Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto and Itsuro Kimura, "Self-Shielding Factors for Neutron Capture Reactions of Uranium-238 and Thorium-232 in Energy Range of 1 - 35 keV", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.28, No.10, 879-893 • (1991).
- 16) Jose Roland Granada, C. Bonetto, Shu A. Hayashi, Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto, Yoshiaki Fujita, Itsuro Kimura, "Total Cross Section of Lead and Contributions from Fundamental Neutron Interactions", Physica B, 190, 259-266 (1993).
- 17) Akihiro Yamanaka, Itsuro Kimura, Satoshi Kanazawa, Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto, Yoshihiro Nakagome, Yoshiaki Fujita and Tadaharu Tamai, "Measurement of Fission Cross

Section of Neptunium-237 in Resonance Region with Electron Linac- Driven Lead Spectrometer", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.30, No.9, 863-869 • (1993).

- ©18) Shuji Yamamoto, Katsuhei Kobayashi and Yoshiaki Fujita, "Application of BGO Scintillators to Absolute Measurement of Neutron Capture Cross Sections between 0.01 eV and 10 eV", J. Nucl. Sci. Technol., Vol.33, No.11, 815-820 (1996).
- ©19) Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto, Akihiro Yamanaka, Yoshihiro Nakagome, Yoshiaki Fujita, Satoshi Kanazawa and Itsuro Kimura, "Characteristics of the Kyoto University Lead Slowing-down Spectrometer (KULS) coupled to an electron linac", Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res. A, 385, 145-156 (1997).
- ©20) Shuji Yamamoto, Katsuhei Kobayashi, Mitsuharu Miyoshi, Itsuro Kimura, Ikuo Kanno, Nobuo Shinohara and Yoshiaki Fujita, "Fission Cross-Section Measurements of ^{241}Am Between 0.1 eV and 10 keV with Lead Slowing-Down Spectrometer and at Thermal Neutron Energy", Nucl. Sci. Eng., 126, 201-212 (1997).

Int'l Conf. and Symp. :

- 1) Itsuro Kimura, Katsuhei Kobayashi, Shu A. Hayashi, Shuji Yamamoto, Hiroshi Nishihara, Masato Ando, Satoshi Kanazawa and Masayuki Nakagawa, "Assessment of Neutron Group Constants for Iron and Stainless Steel through Measurements and Analyses of Energy and Space Distributions of Neutrons in Test Assemblies", Proc. of a Conf. on Nuclear Cross Sections and Technology, in Washington, D.C., NBS Special Publ. 425, Vol. I, pp.184-188 (1975).
- 2) Itsuro Kimura, Shu A. Hayashi, Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto, Hiroshi Nishihara, Takamasa Mori and Masayuki Nakagawa, "The Integral Check of Neutron Cross Section Data for Reactor Structural Materials by Measurement and Analysis of Neutron Spectra", Proc. of the International Conf. on Nuclear Data for Science and Technology, in Antwerp, D.Reidel Publishing Company, pp.98-105 (1982).
- 3) Yoshiaki Fujita, Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto, Itsuro Kimura and Hiroyuki Oigawa, "Measurement of Self-Shielding Factors of Neutron Capture Cross Sections for ^{232}Th and ^{238}U in the Unresolved Resonance Region", International Conf. on Neutron Physics, in Kiev (1987), Neutron Physics, Moscow, Vol.2, pp.195-200 (1988).
- 4) Katsuhei Kobayashi, Itsuro Kimura, Shuji Yamamoto, Ryota Miki and Tetsuo Itoh, "Measurement of Resonance Integrals for Reactor Materials in the Standard 1/E Neutron Spectrum

Field", International Conf. on Neutron Physics, in Kiev (1987), Neutron Physics, Moscow, Vol.4, pp.238-243 (1988).

5) Shu A. Hayashi, Itsuro Kimura, Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto, Takamasa Mori and Masayuki Nakagawa, "Measurement and Analysis of Neutron Spectra in Structural Materials Using an Electron-Linac", Proc. of the International Conf. on Nuclear Data for Science and Technology, in Mito, JAERI, pp.149-152 (1988).

6) Shuji Yamamoto, Katsuhei Kobayashi and Yoshiaki Fujita, "Application of BGO for Neutron Capture Cross Section Measurements", Proc. of the International Conf. on Nuclear Data for Science and Technology, in Mito, JAERI, pp.375-378 (1988).

7) Itsuro Kimura, Akihiro Yamanaka, Satoshi Kanazawa, Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto, Yoshihiro Nakagome, Yoshiaki Fujita and Tadaharu Tamai, "Measurement of Fission Cross Section of Neptunium-237 in Resonance Region with Electron Linac-Driven Lead Spectrometer", Presented at the International Seminar on Interaction of Neutrons with Nuclei, April 1992, at Dubna, Russia.

8) Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto and Yoshiaki Fujita, "Measurement of Capture Cross Sections for ^{238}U and Sb ", Proc. of the International Conf. on Nuclear Data for Science and Technology, held at the Forschungszentrum Juelich, Germany, Ed. by S. M. Qaim, page 65-67, printed in Springer-Verlag, Heiderberg, 1992.

9) Itsuro Kimura, Akihiro Yamanaka, Satoshi Kanazawa, Ikuo Kanno, Yoshiaki Fujita, Katsuhei Kobayashi, Yoshihiro Nakagome, Shuji Yamamoto and Tadaharu Tamai, "Measurement of Fission and Capture Cross Sections for Design of Transmutation Systems", Proc. of Int'l Conf. and Technol. Exposition on Future Nuclear Systems: Emerging Fuel Cycles and Waste Disposal Options, held on 12-17 Sept. 1993 at Seattle, U.S.A., Published by ANS, Inc., Illinois, pp.449-454 (1993).

10) I. Kimura, M. Miyoshi, I. Kanno, S. Kanazawa, K. Kobayashi, S. Yamamoto, and Y. Fujita, "Measurement of Fission Cross Section of ^{241}Am in Resonance Region with Electron Linac-Driven Lead Slowing-down Spectrometer", Presented at the Int'l Seminar on Neutron Spectroscopy, Nuclear Structure, Related Topics, ISINN-2, E3-94-419, pp.288-292, Dubna, April, 1994.

11) Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto, Yoshiaki Fujita, Oleg A. Shcherbakov, and Alexander B. Laptev, "Precise Measurement of Neutron Total Cross Section of Pb-208 and Pb-nat ", Proc. of Int'l Conf. on Nucl. Data for Sci. and Technol., May 9-13, 1994, Gatlinburg, Tenn., Edited by J.K.Dickens, ORNL, Vol.1, 239-241 (1994).

12) Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto, Yoshiaki Fujita, Mitsuharu Miyoshi, Itsuro Kimura, Ikuo Kanno, and Satoshi Kanazawa, "Fission Cross Section Measurement of Am-241 between 0.1 eV and 10 keV with Lead Slowing-down Spectrometer", Proc. of Int'l Conf. on Nucl. Data for Sci. and Technol., May 9-13, 1994, Gatlinburg, Tenn., Edited by J.K.Dickens, ORNL, Vol.1, 242-244 (1994).

13) Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto, Yoshiaki Fujita, Itsuro Kimura, Mitsuharu Miyoshi, Hideki Yamamoto, Ikuo Kanno and Nobuo Shinohara, "Fission Cross Section Measurements of Am-241 and Am-243 Between 0.1 eV and 10 keV with Lead Slowing-down Spectrometer", Proc. of the Ninth ASTM-Euratom Symp. on Reactor Dosimetry, held at Prague, Czech Republic, Sept.2 - 6, 1996,

14) Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto, Tetsuya Kai, Yoshiaki Fujita, Itsuro Kimura, Mitsuharu Miyoshi, Hideki Yamamoto, Nobuo Shinohara, " $^{241,243}\text{Am}(n,f)$ Cross Sections From 0.1 eV to 10 keV Measured with Linac-driven Lead Slowing-down Spectrometer", Proc. of the V Int'l Seminar on Interaction of Neutrons with Nuclei, ISINN-5, Neutron Spectroscopy, Nuclear Structure, Related Topics, May 14-17, 1997, Dubna, Russia.

15) Katsuhei Kobayashi, Tetsuya Kai, Shuji Yamamoto, Yoshiaki Fujita, Itsuro Kimura, Nobuo Shinohara, "Measurement of the $^{243}\text{Am}(n,f)$ Cross Section between 0.1 eV and 10 keV using Lead Slowing-down Spectrometer", Proc. of the Int'l Conf. on Nuclear Data for Sci. and Technol., May 19-23, 1997, Trieste, Italy.

16) Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto, Tetsuya Kai, Yoshiaki Fujita, Itsuro Kimura, Mitsuharu Miyoshi, Ikuo Kanno, Toshio Wakabayashi, Yasushi Ohkawachi, Shigeo Ohki, Nobuo Shinohara, "Measurement of Fission Cross Sections for Nuclear Transmutation on Am-241, Am-242m and Am-243 using Lead Slowing-down Spectrometer", Proc. of the Int'l Conf. on Future Nuclear Systems, Global '97, Oct. 5-10, 1997, Yokohama.

Univ. Bulletins :

1) Itsuro Kimura, Hiroshi Sekimoto, Hiroshi Nishihara, Keisuke Kobayashi, Shu A. Hayashi, Katsuhei Kobayashi, Masatoshi Hayashi, Shuji Yamamoto and Toshikazu Shibata, "The Measurement and the Calculation of Neutron Spectra in Iron Assemblies", Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ., Vol.3, 58-74 (1970).

2) Itsuro Kimura, Shu A. Hayashi, Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto and Toshikazu Shibata, "Measurements of Angular Distributions and Energy Spectra of Photoneutrons from Lead Targets Bombarded by High Energy Electrons", Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ., Vol.3, 75-83

(1970).

- 3) Itsuro Kimura, Shu A. Hayashi, Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto and Hiroshi Nishihara, "Measurement of Neutron Spectra in a Spherical Alumina Pile", Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ., Vol.4, 99-106 (1971).
- 4) Shu A. Hayashi, Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto and Itsuro Kimura, "Measurements of Neutron Spectra in a Baryte Concrete Pile", Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ., Vol.4, 107-112 (1971).
- 5) Hiroshi Nishihara, Masahide Nishio, Itsuro Kimura, Katsuhei Kobayashi, Shu A. Hayashi and Shuji Yamamoto, "Neutron Spectrum in Thoria", Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ., Vol.5, 71- 80 (1972).
- 6) Shuji Yamamoto, Katsuhei Kobayashi, Shu A. Hayashi, Itsuro Kimura, Hiroshi Gotoh and Hideyuki Yagi, "Measurements of the $^{115}\text{In}(n,n')^{115m}\text{In}$ Reaction Cross Section Using a Proton Recoil Detector with a CsI(Tl) Scintillator", Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ., Vol.11, 121-125 (1978).
- 7) Shu A. Hayashi, Shuji Yamamoto, Itsuro Kimura, Katsuhei Kobayashi, Takamasa Mori, Satoshi Kanazawa, Hiroshi Nishihara, et al., "Measurements of Angular Distributions and Energy Spectra of Neutrons from Photoneutron Targets for Fast Neutron Spectrum Study", Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ., Vol.13, 23-35 (1980).
- 8) Takamasa Mori, Hiroshi Nishihara, Itsuro Kimura, Shu A. Hayashi, Katsuhei Kobayashi and Shuji Yamamoto, "Sensitivity Study on the Method to Assess Group Constants with Neutron Spectra", Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ., Vol.13, 42-54 (1980).
- 9) Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto and Itsuro Kimura, "The U-235 Fission Spectrum-Averaged Cross Section for the $^{199}\text{Hg}(n,n')^{199m}\text{Hg}$ Reaction Processed with Covariances between the Data Uncertainties", Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ., Vol. 14, 1-9 (1981).
- 10) Takamasa Mori, Hiroshi Nishihara, Itsuro Kimura, Shu A. Hayashi, Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto and Masayuki Nakagawa, "Measurement and Analysis of Neutron Spectrum in a Lithium Assembly", Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ., Vol.17, 22- 33 (1984).
- 11) Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto, Itsuro Kimura, Ryota Miki and Tetsuo Itoh, "Measurement of Neutron Flux Spectrum by Multi-Foil Activation Method at the Central Graphite Cavity of UTR-KINKI", Kinki Univ. Atomic Energy Res. Inst., Vol.25, 21-34 (1988).

- 12) Shu A. Hayashi, Itsuro Kimura, Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto and Takamasa Mori, "Measurement and Analysis of Angular Spectrum in a Spherical Silicon Pile", Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ., Vol.21, 9-18 (1988).
- 13) Katsuhei Kobayashi, Guangchuan Jin, Shuji Yamamoto, Kiyoshi Takami, Yasuhiro Kimura, Toshihiko Kozuka and Yoshiaki Fujita, "KURRI-Linac as a Neutron Source for Irradiation", Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ., Vol.22, 142-153 (1989).
- 14) Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto, Yoshiaki Fujita, Suresh M. Lee, Satoshi Kanazawa and Itsuro Kimura, "Measurement of Neutron Total Cross Section of Sb", Annu. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ., Vol.23, 1-12 (1990).

Memoir Reports

- 1) Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto and Yoshiaki Fujita, "Application of a Resonance Capture Detector to the Neutron Total Cross Section Measurements of Polyethylene and Lead", JAERI-M 89-026, pp.198-209 (1989).
- 2) Itsuro Kimura, Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto, Ryota Miki and Tetsuo Itoh, "Resonance Integral Measurement with the Standard 1/E Neutron Spectrum Field", JAERI-M 89-026, pp.210-217 (1989).
- 3) Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto and Yoshiaki Fujita, "Measurement of the U-238 Capture cross Section with Neutron Filtered Beams", JAERI-M 90-025, pp.374-382 (1990).
- 4) Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto and Yoshiaki Fujita, "Absolute Measurement of Neutron Capture Cross Sections with BGO Scintillators", JAERI-M 91-032, pp.189-198 (1991).
- 5) Yoshihiro Nakagome, Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto, Yoshiaki Fujita, Akihiro Yamanaka, Satoshi Kanazawa and Itsuro Kimura, "Lead Slowing-down Spectrometer Coupled to Electron Linac (I) - Outline of the Spectrometer - ", JAERI-M 92-027, pp.369-374 (1992).
- 6) Akihiro Yamanaka, Satoshi Kanazawa, Itsuro Kimura, Katsuhei Kobayashi, Yoshihiro Nakagome, Shuji Yamamoto and Yoshiaki Fujita, "Lead Slowing-down Spectrometer Coupled to Electron Linac (II) - Neutron Time Behavior in Lead - ", JAERI-M 92-027, pp.375-383 (1992).

- 7) Katsuhei Kobayashi, Li Zhaohuan, Yoshiaki Fujita, Shuji Yamamoto, Yoshihiro Nakagome, Akihiro Yamanaka, Itsuro Kimura and Satoshi Kanazawa, "Lead Slowing-down Spectrometer Coupled to Electron Linac (III) - Neutron Spectrum - ", JAERI-M 92-027, pp.384-393 (1992).
- 8) Itsuro Kimura, Akihiro Yamanaka, Satoshi Kanazawa, Yoshiaki Fujita, Katsuhei Kobayashi, Yoshihiro Nakagome, Shuji Yamamoto and Tadaharu Tamai, "Measurement of Fission Cross Section of ^{237}Np in Resonance Region with Electron Linac-Driven Slowing-down Spectrometer (KULS)", JAERI-M 93-046, pp.356-359 (1993).
- 9) Katsuhei Kobayashi, Yoshihiro Nakagome, Akihiro Yamanaka, Shuji Yamamoto, Yoshiaki Fujita, Tadaharu Tamai, Satoshi Kanazawa and Itsuro Kimura, "Characteristic Behavior of Neutrons in the Lead Slowing-down Spectrometer Coupled to Electron Linac", JAERI- M 93-046, pp.360-367 (1993).
- 10) Katsuhei Kobayashi, Mitsuharu Miyoshi, Shuji Yamamoto, Yoshiaki Fujita, Itsuro Kimura, Ikuo Kanno and Satoshi Kanazawa, "Measurement of Cross Section for $^{241}\text{Am}(n,f)$ Reaction between 0.5 eV and 10 keV with Lead Slowing-down Spectrometer", JAERI-M 94-019, 179-182 (1994).
- 11) Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto, Yoshiaki Fujita, Oleg A. Shcherbakov and Alexander B. Laptev, "Precise Measurement of Neutron Total Cross Section of Pb-208 and Pb-nat", Proc. of the 1994 Symp. on Nucl. Data, JAERI-Conf 95-008, 125-128 (1995).
- 12) Katsuhei Kobayashi, Mitsuharu Miyoshi, Shuji Yamamoto, Yoshiaki Fujita, Itsuro Kimura, Ikuo Kanno, Satoshi Kanazawa and Nobuo Shinohara, "Measurement of Fission Cross Section with Pure Am-241 Sample using Lead Slowing-Down Spectrometer", Proc. of the 1995 Symp. on Nucl. Data, JAERI-Conf 96-008, 117-122 (1996).
- 13) Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto, Mitsuharu Miyoshi, Itsuro Kimura, Ikuo Kanno, Nobuo Shinohara and Yoshiaki Fujita, "Measurement of Thermal Neutron Cross Section for $^{241}\text{Am}(n,f)$ Reaction", Proc. of the First Internet Symposium on Nuclear Data, held on April 8 - June 15, 1996, JAERI-Conf 97-004, 47-53 (1996).
- 15) Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto, Tetsuya Kai, Yoshiaki Fujita, Hideki Yamamoto, Itsuro Kimura and Nobuo Shinohara, "Measurement of Fission Cross Section with Pure Am-243 Sample using Lead Slowing-Down Spectrometer", Proc. of the 1996 Symp. on Nucl. Data, JAERI-Conf 97-005, 246-251 (1997).
- 16) Tetsuya Kai, Katsuhei Kobayashi, Shuji Yamamoto, Yoshiaki Fujita, Itsuro Kimura, Mitsuharu Miyoshi, Hideki Yamamoto and Nobuo Shinohara, "The Influence of Impurities for Cross Section

Measurement of $^{241,243}\text{Am}(n,f)$ Reactions", Proc. of the 1996 Symp. on Nucl. Data, JAERI-Conf 97-005, 280-285 (1997).